

# Deutschlandweite Untersuchung der $^{129}\text{I}$ - und $^{127}\text{I}$ -Inventare und ihres Isotopenverhältnisses in verschiedenen Umweltkompartimenten

Von der Naturwissenschaftlichen Fakultät der  
Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover  
zur Erlangung des Grades

Doktorin der Naturwissenschaften

Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation

von

Dipl.-Chem. Annika Mareike Schwinger

geboren am 9. Oktober 1985 in Bielefeld

2014

Referent: Prof. Dr. Carla Vogt  
Naturwissenschaftliche Fakultät  
Institut für Anorganische Chemie  
Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover

Korreferent: Prof. Dr. Clemens Walther  
Fakultät für Mathematik und Physik  
Institut für Radioökologie und Strahlenschutz  
Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover

Tag der Promotion: 15.10.2014

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Dissertation selbstständig verfasst habe und die benutzten Hilfsmittel sowie eventuell zu Hilfsleistungen herangezogene Institutionen vollständig angegeben habe. Ferner versichere ich, dass die Dissertation nicht bereits als Diplomarbeit oder andere Prüfungsleistung verwendet worden ist.

Hannover, im Oktober 2014

---

Mareike Schwinger

## Danksagung

Für die Hilfe und Unterstützung die ich beim fertigstellen dieser Dissertation erhalten habe bin ich vielen Leuten zu Dank verpflichtet.

Insbesondere möchte ich Frau Prof. Carla Vogt und Herrn Prof. Clemens Walther für die Übernahme der Betreuung danken. Sie waren beide immer bereit Ergebnisse und Probleme mit mir zu diskutieren. Dr. Beate Riebe, Dr. Abdelouahed (Wahid) Darauoi und Monika Gorny möchte ich ganz herzlich danken für die Hilfe bei der Probenahme und Aufarbeitung und außerdem für die anschließenden Diskussion der Ergebnisse. Ohne euch wäre diese Arbeit nicht fertig geworden. Auch bei Gabriele (Gabsch) Erb-Bunnenberg und Hilal Almendar bedanke ich mich für die Ermittlung der bodenkundlichen Parameter. Dr. Stefan Bister danke ich für die Unterstützung bei der Probenahme und bei allen möglichen anderen Schwierigkeiten. Mein Dank geht außerdem an Rüdiger Sachse, der mir bei technischen Problemen zu Seite stand. Karl-Heinz Iwannek danke ich für die tollen Zeichnungen und die netten Gespräche. Der Werkstatt danke ich für das Erstellen und reparieren der Bohrstöcke, womit wir sie fast in den Wahnsinn getrieben haben, auch wenn dies keineswegs unsere Absicht gewesen ist, und für die Hilfe bei allen anderen Problemen. Frank Koepke danke ich außerdem für freitägliche Versorgung mit Bratwurst. Dr. Dieter Jakob gebührt Dank für das Korrekturlesen dieser Arbeit und die stets hilfreichen Anregungen. Linda Hamann danke ich für die tolle Stimmung im Büro und dass sie mich stets motiviert und unterstützt hat. Allen anderen Mitarbeitern des IRS danke ich für die schöne Zeit, das großartige Arbeitsklima und die netten Mensagänge.

Bei den Mitgliedern des Arbeitskreises analytische Chemie von Frau Prof. Carla Vogt möchte ich mich für die Möglichkeit bedanken, dort die ICP-MS Messungen durchführen zu können. Dabei gilt mein Dank insbesondere René Frankfurter, der mir bei jedem noch so kleinen Problem geholfen hat und an Fabian Zimmermann und Jan Thielke, die diese Aufgabe nach Renés Weggang übernommen haben. Außerdem allen Mitgliedern des AK Vogt für die netten Unterhaltungen, Seminare und leckeren Kuchen.

Den Mitgliedern der Arbeitsgruppe Ionenstrahlphysik der ETH Höggerberg in Zürich und ganz besonders Dr. Christof Vockenhuber und Prof. Hans-Arno Synal danke ich für die Durchführung der AMS-Messungen. Außerdem möchte ich mich die Gastfreundschaft in Zürich bedanken.

Meinen Hiwis und Forschungspraktikanten Meijie Cheng, Dorothee (Doro) Fuchs, Andreas Gerstl und Fabian Zimmermann möchte ich für ihre Mithilfe insbesondere bei den ICP-MS Messungen danken.

Meinen Eltern möchte ich dafür danken, dass sie mir das Studium ermöglicht haben und mich moralisch und finanziell immer unterstützten. Ganz besonders möchte ich auch meinem Verlobten Dr. Daniel Schaper danken, dafür dass er immer für mich da ist und außerdem diese Arbeit so sorgfältig korrekturgelesen hat.

## Kurzzusammenfassung

Schlagworte:  $^{129}\text{I}$ -Inventar,  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis, Umweltkompartimente

Durch den anthropogenen Eintrag ist das natürliche  $^{129}\text{I}$ -Inventar in Deutschland nachhaltig verändert worden. Auch das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis ist aus dem Gleichgewicht geraten. Die Hauptquelle für den  $^{129}\text{I}$ -Eintrag in Deutschland ist dabei die Nordsee.

Um eine Grundlage für die Beurteilung der Veränderung des Ein- und Austrags und daraus folgend des Inventars von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in ganz Deutschland zu bekommen, werden Daten zu den Iodkonzentrationen in Niederschlägen, Aerosolen, Böden und Fließgewässern gesammelt. Bei den Niederschlägen und Aerosolen werden über einen Zeitraum von zwei Jahren Monatsproben an deutschlandweit verteilten Messstationen genommen. Die Bodenproben werden einmalig an den Probenahmestellen der Niederschläge und Aerosole gesammelt und zusätzlich an weiteren ungestörten Standorten. Die Fließgewässerproben stammen von den großen Deutschen Wasserstraßen und werden quartalsweise über zwei Jahre entnommen.

Die  $^{129}\text{I}$ -Deposition durch Niederschläge und Aerosole nimmt von Norden nach Süden und von Westen nach Osten ab. Für das stabile  $^{127}\text{I}$  ergeben sich in unmittelbarer Nähe zur Nordsee deutlich höhere Einträge als in den küstenfernen Regionen. Die Depositionsraten durch die Niederschläge sind deutlich höher als die durch Aerosole. Vielerorts lassen sich zudem lokale Einflüsse erkennen.

Das  $^{129}\text{I}$ -Inventar im Boden sowie auch das Isotopenverhältnis nehmen bis zu einer Tiefe von 50 cm exponentiell ab. Auch hier zeigen sich die höchsten Werte im Norden und Westen Deutschlands. Die Depositionsdichten sind für  $^{129}\text{I}$  im Norden am höchsten und am niedrigsten im Osten und Südosten. Beim  $^{127}\text{I}$  hängen sie hauptsächlich von den Bodeneigenschaften ab. Es ergeben sich kaum geografische Unterschiede für die  $^{127}\text{I}$ -Depositionsdichten.

Die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration in den Fließgewässern nimmt von der Quelle zur Mündung zu. Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentration ist dagegen über den Flusslauf konstant. Beide Isotope werden durch mehrere Quellen beeinflusst.

Ein Vergleich mit älteren Daten ergibt keine signifikanten Veränderungen in den letzten 15 bis 20 Jahren. Die gefundenen Isotopenverhältnisse sind derzeit in Hinsicht auf eine erhöhte Schilddrüsendosis der Bevölkerung unbedenklich.

## Abstract

Keywords:  $^{129}\text{I}$ -Inventory,  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopic ratio, environmental compartments

The natural  $^{129}\text{I}$ -inventory in Germany has sustainably been changed through the anthropogenic input. Also the  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -isotopic ratio is now in a state of disequilibrium. The main source for the  $^{129}\text{I}$ -input in Germany is the North Sea.

Data about iodine concentrations in precipitation, aerosols, soils and flowing waters are collected to create a database to be able to evaluate a change in in- and output and therefore following the inventory of  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  all over Germany.

The precipitation and aerosol samples are monthly sampled at Germany-wide distributed sampling locations for a period of two years. The soil samples are taken only once at the sampling stations for precipitation and aerosols and additionally at more undisturbed locations. The flowing water samples come from the major German rivers and are sampled quarterly for a period of two years.

The  $^{129}\text{I}$ -deposition through precipitation and aerosols decreases from north to south and from west to east. For the stable  $^{127}\text{I}$  higher inputs result in locations directly neighbouring the North Sea, than in the areas remote from the coast. Deposition rates are much higher through precipitation as through aerosols, besides local influences can be recognised.

In soil samples the  $^{129}\text{I}$ -inventory the same as the isotopic ratio decrease exponentially within a depth of 50 cm. The highest values are also pointed out in the north and west. For  $^{129}\text{I}$  the deposition densities are highest in the north and lowest in the east and southeast. For  $^{127}\text{I}$  they depend mainly on the soil properties. There are almost no geographical differences for the  $^{127}\text{I}$ -deposition densities.

The  $^{129}\text{I}$ -concentration in flowing waters decreases from source to estuary. However the  $^{127}\text{I}$ -concentration is constant over the whole course. Both isotopes are influenced by multiple sources.

In comparison with older data no significant change in the last 15 to 20 years is found at the moment. The measured isotopic ratios are of no concern due to an elevated thyroid gland dose of the population.

## Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b> .....	<b>9</b>
<b>2</b>	<b>Theoretischer Hintergrund</b> .....	<b>17</b>
<b>3</b>	<b>Analysenmethoden</b> .....	<b>22</b>
3.1	Induktiv gekoppeltes Plasma - Massenspektrometrie.....	22
3.1.1	Probenzufuhr .....	22
3.1.2	Ionisation .....	23
3.1.3	Separation.....	24
3.1.4	Detektion .....	24
3.2	Beschleunigermassenspektrometrie.....	25
3.2.1	Ionisation .....	25
3.2.2	Niederenergie-Massenspektrometer .....	26
3.2.3	Beschleuniger .....	27
3.2.4	Hochenergie-Massenspektrometer .....	27
3.2.5	Detektion .....	28
3.3	Gammastrahlenspektrometrie.....	28
3.3.1	Messprinzip .....	28
3.3.2	Detektor.....	29
<b>4</b>	<b>Experimenteller Teil</b> .....	<b>30</b>
4.1	Probenahme .....	30
4.1.1	Herkunft .....	30
4.1.1.1	Niederschlag .....	30
4.1.1.2	Aerosol.....	31
4.1.1.3	Boden .....	32
4.1.1.4	Flusswasser .....	33
4.1.2	Probenahme und Sammelzeiträume .....	34
4.1.2.1	Niederschlag .....	34
4.1.2.2	Aerosol.....	35

4.1.2.3	Boden .....	36
4.1.2.4	Flusswasser .....	36
4.1.3	Probenpräparation .....	36
4.1.3.1	Wasser.....	36
4.1.3.2	Aerosolfilter .....	37
4.1.3.3	Boden .....	38
4.1.4	Bedeutung der Bodenparameter .....	40
4.1.4.1	Oxide.....	41
4.1.4.2	Organische Bestandteile.....	41
4.1.4.3	Körnung .....	41
4.1.4.4	pH-Wert .....	42
4.1.4.5	Lagerungsdichte .....	42
4.2	Messmethoden .....	42
4.2.1	ICP-MS.....	43
4.2.2	AMS .....	45
<b>5</b>	<b>Ergebnisse und Diskussion.....</b>	<b>47</b>
5.1	Niederschlag .....	47
5.2	Aerosole.....	58
5.2.1	Vergleich der vier Messstationen.....	59
5.2.2	Braunschweig .....	65
5.3	Boden.....	67
5.3.1	Ergebnisse der Iodmessungen .....	68
5.3.2	Aachen.....	79
5.3.3	Korrelationen mit den Bodenparametern .....	80
5.3.3.1	Organische Substanz .....	81
5.3.3.2	Oxide.....	84
5.3.3.3	Korngrößenverteilung .....	87
5.3.3.4	pH-Wert .....	88



5.4	Oberflächenwasser.....	89
5.5	Vergleich der Kompartimente .....	97
5.5.1	Niederschlag und Aerosol .....	97
5.5.2	Niederschlag, Aerosole, Boden und Fließgewässer .....	100
5.5.3	Isotopenverhältnisse .....	103
5.6	Beurteilung der Ergebnisse.....	106
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick.....</b>	<b>110</b>
<b>7</b>	<b>Anhang .....</b>	<b>114</b>
7.1	Charakteristische Grenzen .....	114
7.2	Braunschweig .....	115
7.3	Aachen .....	117
7.4	Daten.....	119
7.5	Abbildungsverzeichnis .....	141
7.6	Tabellenverzeichnis .....	146
7.7	Lebenslauf .....	147
<b>8</b>	<b>Abkürzungsverzeichnis .....</b>	<b>150</b>
<b>9</b>	<b>Literatur.....</b>	<b>151</b>

# 1 Einleitung

Schon seit Jahrtausenden ist die Energiegewinnung ein wichtiger Bestandteil des menschlichen Alltags. Durch die Entdeckung der Kernspaltung von Hahn und Straßmann im Jahr 1938 kam die Kernenergie als weitere Möglichkeit der Energieerzeugung hinzu [1].

Seit Beginn der Nutzung der Kernenergie für zivile und militärische Zwecke in den 1940er Jahren werden anthropogen erzeugte Radionuklide in die Umwelt freigesetzt. Dazu gehören unter anderem radioaktive Iodisotope. Da Iod ein sehr mobiles Element ist und in der Umwelt vielfältig vorkommt, ist es wichtig das Vorkommen in der Umwelt zu überwachen. Das langlebigste Iodisotop ist dabei das  $^{129}\text{I}$  mit 15,7 Mio. Jahren Halbwertszeit. Es wird bzw. wurde durch Kernwaffentests, Unfälle in Kernreaktoren und insbesondere durch die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstäben freigesetzt.

Um die Veränderungen in der Umwelt messen zu können, wird das Isotopenverhältnis von  $^{129}\text{I}$  zum stabilen  $^{127}\text{I}$  betrachtet. Da  $^{129}\text{I}$  auch durch natürliche Prozesse gebildet wird, lassen sich anthropogene Einflüsse so besser erkennen. Das natürliche Isotopenverhältnis  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  von  $1,5 \cdot 10^{-12}$  wurde von Moran in marinen Sedimenten gemessen [2]. Es ist jedoch durch die anthropogenen Einträge in nahezu allen Umweltkompartimenten massiv verändert worden.

Im Rahmen dieser Dissertation sollen der Eintrag (Niederschlags- und Aerosolproben), das Inventar (Bodenproben bis in 50 cm Tiefe) und der Austrag (Fließgewässerproben) von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  und daraus folgend das Isotopenverhältnis Deutschlandweit untersucht werden. Zum Thema  $^{129}\text{I}$  in Umweltproben sind bereits mehrere Dissertationen am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZSR), früherer Name des heutigen Instituts für Radioökologie und Strahlenschutz (IRS), verfasst worden [3–8]. Bisher wurden jedoch nur lokale Untersuchungen durchgeführt und nicht das gesamte Bundesgebiet betrachtet. Die Arbeiten wurden zudem unter anderen Fragestellungen wie der Methodenentwicklung oder der retrospektiven Dosimetrie verfasst. Sie hatten nicht zum Ziel den Ein- und Austrag in Deutschland zu betrachten. Es ist deshalb notwendig, die Untersuchung auf ganz Deutschland auszuweiten, um eine Beurteilung der Veränderungen sowie der Gefährdung der Bevölkerung zu ermöglichen.

Durch die oberirdischen Kernwaffentests wurde  $^{129}\text{I}$  in die Atmosphäre freigesetzt und dadurch global verteilt. Der erste fand 1945 und der letzte 1980 statt [9]. Dabei sind zwischen 43 und 150 kg  $^{129}\text{I}$  freigesetzt worden. Die große Spanne der Werte ergibt sich daraus, dass die genaue Sprengkraft der Bomben nicht bekannt ist [10]. Durch die Atomwaffentests hat sich das Isotopenverhältnis bis zu den 1980er Jahren bereits auf  $\sim 10^{-10}$  erhöht [11].

## Einleitung

Aus Unfällen in Kernkraftwerken stammen vergleichsweise geringe Mengen an  $^{129}\text{I}$ . Dabei sind in Tschernobyl zwischen 2 und 6 kg und in Fukushima ca. 1 kg freigesetzt worden [12, 13].

Die Hauptquellen des anthropogenen  $^{129}\text{I}$  sind jedoch die europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen (WAAs) in La Hague (Frankreich) und Sellafield (Großbritannien). Sellafield ist 1951 in Betrieb genommen worden und La Hague im Jahr 1966. Nachdem die jährlichen Emissionen zunächst stark gestiegen sind, sind vor allem die gasförmigen Emissionen durch den Einbau von Filtermaßnahmen seit Beginn der 1990er Jahre wieder deutlich reduziert worden. In Abbildung 1 sind die jährlichen flüssigen Ableitungen der WAAs gezeigt. Für die flüssigen Ableitungen aus Sellafield vor 1965 sind keine Daten verfügbar. Abbildung 2 zeigt die jährlichen gasförmigen Emissionen der WAAs [8, 10, 14–20].

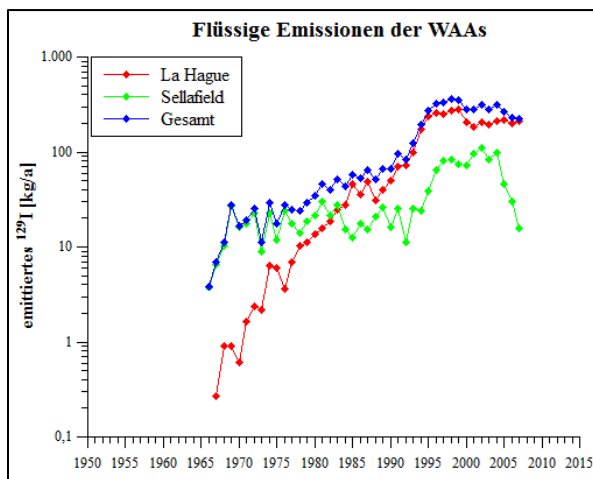


Abbildung 1: Zeitliche Entwicklung der flüssigen Emissionen der WAAs pro Jahr

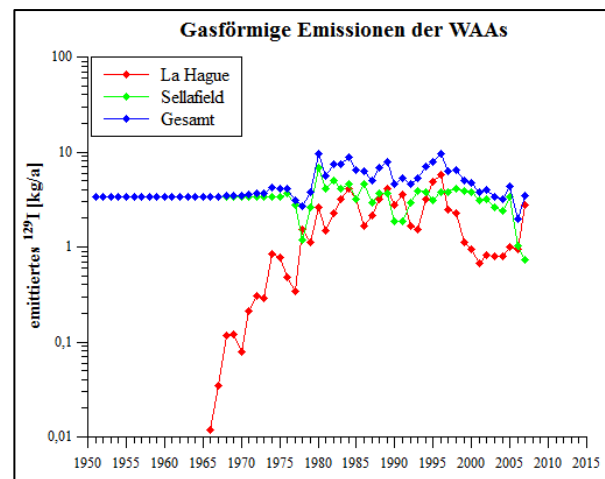


Abbildung 2: Zeitliche Entwicklung der gasförmigen Emissionen der WAAs pro Jahr

Das meiste  $^{129}\text{I}$  wird demnach über die flüssigen Emissionen freigesetzt. Werden die Daten für alle Jahre aufsummiert liegen sie mit insgesamt 6.018 kg  $^{129}\text{I}$  deutlich über den gasförmigen Emissionen mit 270 kg. Die flüssigen Emissionen gelangen über den Ärmelkanal bzw. die Irische See in die Nordsee.

Durch Reemissionen wird das Iod dort wieder freigesetzt und gelangt über die Atmosphäre nach Deutschland [10, 21–23]. Es wird über die Niederschläge deponiert, in den Boden eingetragen und gelangt in die Oberflächengewässer. Das natürliche Isotopenverhältnis ist dadurch massiv im Ungleichgewicht [24].

Heute werden im Meerwasser der Nordsee Isotopenverhältnisse zwischen  $4 \cdot 10^{-9}$  -  $3 \cdot 10^{-6}$  gefunden. Dabei lassen sich die flüssigen Ableitungen der WAAs eindeutig als Quelle identifizieren. Unter anderem ist dazu auch von Tosch eine Dissertation am ZSR und von

Raiwa eine Bachelorarbeit am IRS angefertigt worden [8, 10, 25]. In der Ostsee finden sich niedrigere Isotopenverhältnisse als in der Nordsee, da das  $^{129}\text{I}$  erst durch den Wasseraustausch mit der Nordsee eingetragen wird. In der Arbeit von Tosch und in der Literatur sind hierfür Isotopenverhältnisse von  $10^{-8}$  -  $10^{-7}$  angegeben [8, 11].

### *Niederschlag*

Das  $^{129}\text{I}$  im Regenwasser in Deutschland stammt hauptsächlich aus der Nordsee. Es lassen sich Isotopenverhältnisse von bis zu  $10^{-6}$  messen [10]. Am ZSR/IRS werden seit vielen Jahren (seit 1997) Niederschlagsproben aus Niedersachsen untersucht, um die zeitliche Entwicklung zu verfolgen. Die geometrischen Mittelwerte der Isotopenverhältnisse liegen immer im Bereich von  $10^{-7}$ . Erwartungsgemäß werden die höchsten Werte auf Norderney gefunden, da dort ein direkter Einfluss der Nordsee vorliegt [3–7].

Untersuchungen von Regenwasser in Bayern durch Reithmeier ergaben ebenfalls Isotopenverhältnisse von  $10^{-7}$  [26]. Gómez-Guzmán berichtet für den Zeitraum von 2005 - 2008 von Isotopenverhältnissen von  $10^{-8}$  in Sevilla (Spanien) [21]. Auch Persson hat in Niederschlagsproben in Schweden Isotopenverhältnisse von  $10^{-8}$  -  $10^{-7}$  nachgewiesen. Es wird außerdem berichtet, dass die Isotopenverhältnisse in Küstennähe größer sind als im Inland [27]. In Regenwasserproben aus Dänemark wurden von Hou ebenfalls Isotopenverhältnisse im Bereich  $10^{-8}$  -  $10^{-7}$  gefunden. Hou berichtet zudem, dass die dominierende Spezies für  $^{129}\text{I}$ , im Unterschied zum stabilen Iod, Iodid sei. Er erklärt dies damit, dass sich das  $^{129}\text{I}$  nicht im Gleichgewicht befindet und vor allem in den Küstenregionen der Nordsee elementares ( $^{129}\text{I}_2$ ) durch Algen gebildet wird. Dieses wandelt sich schnell in gasförmige anorganische Iodspezies (z.B. HOI) um, die im Niederschlag  $^{129}\text{I}$  bilden. Eine Umwandlung von Iodid ins thermodynamisch stabilere Iodat ist kinetisch gehemmt und findet deshalb nur sehr langsam statt. Hou schließt daraus, dass die Hauptquelle für  $^{129}\text{I}$  im Niederschlag die Nordsee ist. Das  $^{127}\text{I}$  dagegen hat verschiedene Quellen, dazu gehören sowohl Reemissionen aus der Nordsee, als auch Freisetzungen aus Böden. Bei der Alterung von Aerosolen reichert sich Iodat an, welches beim Einschluss in Wassertropfen aus den Aerosolen herausgelöst werden kann. Dadurch erhöht sich wiederum der Anteil von Iodat im Niederschlag [23, 28].

### *Aerosol*

Mit den Gehalten von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  sowie dem Isotopenverhältnis in Aerosolen hat sich Ernst in seiner Dissertation am ZSR beschäftigt [4]. Er kommt dabei zu dem Ergebnis, dass auch die Aerosole stark von der Nordsee beeinflusst werden. In seiner Arbeit vergleicht er

Messungen von der Insel Föhr mit Messungen aus Hannover-Herrenhausen. Die Größenverteilung der Aerosole wurde mit Hilfe eines BERNER Impaktors untersucht. Zusätzlich wurde auch zwischen anorganischem und organischem gasförmigen Iod unterschieden. Dabei sind die Isotopenverhältnisse in der Summe aus Föhr ( $10^{-8}$ ) um etwa eine Größenordnung höher als die aus Herrenhausen ( $10^{-9}$ ). Wie beim Niederschlag lässt sich auch hier ein Einfluss des *sea-sprays* erkennen [4]. In einer Langzeitmessung von Aerosolproben aus Niedersachsen, die am ZSR/IRS durchgeführt wird, ergeben sich Isotopenverhältnisse von  $10^{-7}$ . Allerdings werden die Aerosole in diesen Messungen auf nur einem Filter gesammelt und nicht wie bei Ernst mit einem BERNER Impaktor gefolgt von selektiven Filtern für gasförmige Iodspezies. Es wird also nur das partikelgebundene Iod erfasst [3]. Wird bei den Messungen von Ernst jedoch nur das korrigierte Ergebnis der Impaktor Messung betrachtet ergibt sich ein Isotopenverhältnis von  $8 \cdot 10^{-7}$ , während die gasförmigen Spezies deutlich niedrigere Isotopenverhältnisse aufweisen [4]. Die Ergebnisse für partikelgebundenes Iod, die Ernst in seiner Dissertation ermittelt hat sind demnach in guter Übereinstimmung mit den Langzeitmessungen aus Niedersachsen. In einer Langzeitstudie (1983 - 2008) aus Schweden stellte Englund eine gute Korrelation zwischen den Gehalten an  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  fest, woraus auf eine gemeinsame Quelle geschlossen wurde. Da die Gehalte auch eine gute Übereinstimmung mit den flüssigen Emissionen aus La Hague und Sellafield zeigten, ist die Nordsee als Hauptquelle vermutet worden. Die gefundenen Isotopenverhältnisse variierten in Südschweden zwischen  $10^{-9}$  -  $10^{-7}$  und in Nordschweden zwischen  $10^{-9}$  -  $10^{-8}$  [29]. In Aerosolen aus Sevilla (Spanien) wurden von Santos Isotopenverhältnisse zwischen  $10^{-9}$  -  $10^{-8}$  gemessen. Dabei wurden über ein Jahr Filterproben gesammelt und zu monatlichen Analysen zusammengefasst. Es wurde dabei hauptsächlich ein Einfluss der gasförmigen Ableitungen aus La Hague und Sellafield vermutet [30]. Auch bei Messungen von Aerosolfiltern aus Wien wurde ein Zusammenhang der  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen mit den gasförmigen Emissionen aus Sellafield festgestellt. Es ist jedoch kein Zusammenhang zwischen den  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Gehalten gefunden worden, sodass unterschiedliche Quellen angenommen wurden. Jabbar hat dabei Isotopenverhältnisse zwischen  $10^{-8}$  -  $10^{-7}$  ermittelt. Bei Messungen von Aerosolen in Höhenlagen (Zugspitze und Sonnblick) fand sie deutlich niedrigere Werte für die Iodkonzentrationen. Die Gehalte an  $^{129}\text{I}$  zeigten jedoch eine deutlich größere Abnahme im Vergleich zu den  $^{127}\text{I}$ -Werten. Dadurch ergaben sich für die Isotopenverhältnisse Werte zwischen  $10^{-9}$  -  $10^{-8}$ . Sie vermutet dort ebenfalls einen Einfluss der Emissionen der WAAs [31, 32]. Bei Messungen in der Nähe von Wiederaufarbeitungsanlagen wurden in Aerosolen deutlich höhere Isotopenverhältnisse gefunden. Wershofen und Aumann untersuchten 1986

und 1987 Aerosolfilter aus der unmittelbaren Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlage in Karlsruhe (WAK). Dabei fanden sie Isotopenverhältnisse im Bereich von  $10^{-7}$  -  $10^{-6}$  [33].

### *Boden*

Ernst hat in seiner Dissertation verschiedene Bodenproben aus Niedersachsen untersucht. Darunter waren auch Proben die auf einer Weide und einer Rasenfläche genommen wurden. In den oberen Bodenschichten fand er Isotopenverhältnisse von  $10^{-8}$  [4]. Auch Szidat hat in seiner Arbeit Bodenproben aus Niedersachsen untersucht, darunter auch viele Flächen die als Wiesen und Weiden genutzt worden sind [7]. Er gibt ebenfalls ein Isotopenverhältnis im Bereich von  $10^{-8}$  an. Dass das Isotopenverhältnis im Niederschlag um ein bis zwei Größenordnungen höher ist, begründet er mit einer Verdünnung des Isotopenverhältnisses im Boden durch das über einen deutlich längeren Zeitraum eingetragene  $^{127}\text{I}$  [7]. In seiner Dissertation hat Daraoui unter anderem Bodenproben aus Bayern untersucht [3]. Diese stammen jedoch zum größten Teil aus Waldgebieten und sind deshalb nur bedingt mit den Proben aus dieser Arbeit vergleichbar. Für die Wiesenstandorte hat er jedoch ebenfalls Isotopenverhältnisse von  $10^{-8}$  angegeben [3, 12].

Fünf Bodenprofile aus Deutschland wurden von Aumann untersucht. Die Probenahmestellen waren dabei über ganz Deutschland verteilt. Das höchste Isotopenverhältnis hat er dabei in der Probe aus Sylt mit durchschnittlich  $3,3 \cdot 10^{-7}$  gefunden. Den niedrigsten Wert fand er in der Probe aus Ostbayern mit  $3 \cdot 10^{-8}$ . Die Werte nahmen von Norden nach Süden bzw. Westen nach Osten ab. Innerhalb der Profile fand er außerdem eine Abnahme des Isotopenverhältnisses mit größerer Tiefe [34]. Aus der Umgebung der WAK wurden von Schmitz drei Bodenproben untersucht. Die Isotopenverhältnisse lagen dabei alle im Bereich  $10^{-7}$ . Es wurden außerdem fraktionierte Extraktionen durchgeführt um die Pflanzenverfügbarkeit von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  zu untersuchen. Dabei befand sich der größte Anteil (40 %) an  $^{129}\text{I}$  in der wasserlöslichen Fraktion und jeweils etwa 10 % in der oxidischen und organischen. Das  $^{127}\text{I}$  zeigte eine deutlich andere Verteilung. Etwa 75 % befanden sich in der nicht extrahierbaren Fraktion, nur ca. 10 % waren oxidisch gebunden und weniger als 5 % an die organische Substanz [35]. Hansen hat eine Bodenmischprobe (12 Probenahmeorte) aus Schweden mittels fraktionierter Extraktion untersucht. Sie hat dabei Isotopenverhältnisse von  $10^{-8}$  bis  $10^{-7}$  in den verschiedenen Fraktionen gefunden. Der größte Teil des  $^{129}\text{I}$  (83 - 90 %) wurde dabei zusammen mit den Oxiden und den Humin- und Fulvosäuren gefunden. Für das  $^{127}\text{I}$  waren es dagegen nur 65 - 75 %. Der Rest des Iods wurde jeweils anderen Fraktionen zugeordnet [36]. Ähnliche Verteilungen für  $^{129}\text{I}$  gibt Hou für Proben aus der Nähe von Sellafield und der

Chernobyl-Region an [37]. Bei der Untersuchung von zwei Lössböden aus China durch Hou wurde das meiste Iod in der organisch gebundenen Fraktion gemessen. Das gilt sowohl für  $^{129}\text{I}$  als auch für  $^{127}\text{I}$ . Beide Isotope zeigten ein sehr ähnliches Verteilungsmuster für alle Fraktionen [38]. Die unterschiedlichen Resultate lassen sich durch unterschiedliche Eintragswege und Unterschiede in den Bodeneigenschaften erklären. Muramatsu hat in der Zeit von 1979 - 1983 neben anderen Proben Boden aus Japan untersucht. Dabei wurden sowohl Proben in der Nähe einer Wiederaufarbeitungsanlage als auch in unbeeinflussten Gebieten genommen. In der Nähe der WAA hat er Isotopenverhältnisse von  $10^{-7}$  gemessen, in den weit entfernten Gebieten dagegen nur  $10^{-9}$ . Er hat außerdem festgestellt, dass das meiste  $^{129}\text{I}$  in den oberen Bodenschichten zu finden ist. Die Konzentration des  $^{129}\text{I}$  war in 20 - 25 cm um etwa zwei Größenordnungen geringer als an der Oberfläche. Daraus schloss er, dass das Iod über den Niederschlag eingetragen und im Oberboden akkumuliert wurde [39]. Bodenproben aus der unmittelbaren Umgebung (maximal 5 km entfernt) einer WAA in Indien wurden von Doshi untersucht. Es sind dabei Oberbodenproben (0 - 5 cm) an verschiedenen Stellen entnommen worden. Die gemessenen Isotopenverhältnisse lagen dabei zwischen  $10^{-7}$  und  $10^{-6}$ . Sie wurden mit Zunahme der Entfernung zur WAA kleiner [40].

### *Oberflächenwässer*

In der bereits beim Niederschlag erwähnten Zeitreihe, die am ZSR/IRS erstellt wird, werden ebenfalls Oberflächenwässer gemessen. Dabei handelt es sich in den küstenfernen Regionen um drei kleinere Flüsse. Die gemessenen Isotopenverhältnisse liegen im Bereich von  $10^{-9}$  bis  $10^{-8}$  [3–7].

In einer Studie über Flusswasser im Ostseeraum (Schweden, Finnland, Estland, Lettland, Litauen, Polen und Deutschland) wurden von Aldahan 54 Flüsse untersucht, die alle in die Ostsee münden. Dabei wurden in den Flüssen in der südlichen Region höhere Werte gefunden als in der nördlichen. Es werden nur Werte für die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration angegeben. Diese lagen bei  $10^7 - 10^8$  Atome/l in der nördlichen und  $10^8 - 10^9$  Atome/l in der südlichen Region. Damit lagen die Werte bis zu fünf Größenordnungen über dem angenommen natürlichen Gehalt von  $10^4$  Atome/l. Die höheren Werte im Süden wurden durch die kürzere Entfernung zur Nordsee bzw. der Nähe zum Eintragsbereichs von Nordseewasser in die Ostsee erklärt [41]. Bei der Untersuchung von 26 Flüssen in Schweden durch Kekli wurden ebenfalls die höchsten  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen im Süden gefunden. Eine Abschätzung des Isotopenverhältnisses ergab Werte im Bereich  $10^{-8} - 10^{-7}$  für Südschweden. Als Quelle des  $^{129}\text{I}$  wurden die Emissionen der WAAs genannt [42]. Moran hat viele Flüsse in den USA, Kanada und Europa untersucht. Sie

## Einleitung

---

gibt dabei ein Isotopenverhältnis von  $10^{-8}$  für den Rhein an (Mannheim, Juni 1996). Insgesamt reichten die gefundenen Isotopenverhältnisse über vier Größenordnungen ( $10^{-11}$  -  $10^{-7}$ ). Dabei wurden für die Flüsse mit den höchsten Werten lokale Quellen, z.B. WAAs, ausgemacht [43]. Das weltweite Vorkommen von  $^{129}\text{I}$  in Flüssen und Seen wurde von Snyder untersucht. Für die Europäischen Flüsse (Daten aus England, 1999) und Seen (Daten aus Deutschland, 1997 bzw. 1999) gibt er Isotopenverhältnisse von  $10^{-8}$  an. Es wurden in allen Regionen Isotopenverhältnisse gefunden, die über dem natürlichen Verhältnis lagen. Das anthropogene  $^{129}\text{I}$  ist demnach global im Oberflächenwasser verteilt, mit den höchsten Werten in den mittleren Breiten der nördlichen Hemisphäre [44].

Das anthropogene Vorkommen von  $^{129}\text{I}$  ist demnach bereits in diversen Studien und Kompartimenten untersucht worden. Tabelle 1 fasst die in der Literatur aufgeführten Isotopenverhältnisse noch einmal zusammen:

**Tabelle 1: Übersicht über die in der Literatur genannten Isotopenverhältnisse**

Probenahmeort	Zeitraum	Isotopenverhältnisse	Quelle
<i>Niederschlag</i>			
Niedersachsen	1997-heute	$10^{-7}$	[3–7]
Bayern	2003, 2004	$10^{-7}$	[26]
Sevilla (Spanien)	2005 - 2008	$10^{-8}$	[21]
Schweden	1999 - 2003	$10^{-8}$ - $10^{-7}$	[27]
Dänemark	2001 - 2006	$10^{-8}$ - $10^{-7}$	[23, 28]
<i>Aerosol</i>			
Niedersachsen	2002	$10^{-9}$ - $10^{-8}$	[4]
Niedersachsen	1997 - heute	$10^{-7}$	[3]
Schweden	1983 - 2008	$10^{-9}$ - $10^{-7}$	[29]
Sevilla (Spanien)	2001	$10^{-9}$ - $10^{-8}$	[30]
Wien (Österreich)	2001	$10^{-8}$ - $10^{-7}$	[31]
Alpen	2001	$10^{-9}$ - $10^{-8}$	[32]
Umgebung WAK	1986, 1987	$10^{-7}$ - $10^{-6}$	[33]
<i>Boden</i>			
Niedersachsen	1999	$10^{-8}$	[4]
Niedersachsen	2003	$10^{-8}$	[7]
Bayern	1998, 1999	$10^{-8}$	[3, 12]
Deutschland	1995	$10^{-8}$ - $10^{-7}$	[34]
Umgebung WAK	1982	$10^{-7}$	[35]
Schweden	2003	$10^{-8}$ - $10^{-7}$	[36]



## Einleitung

---

Japan	1979 - 1983	$10^{-9} - 10^{-7}$	[39]
Indien (Umgebung WAA)	1987 - 1990	$10^{-7} - 10^{-6}$	[40]
<i>Oberflächenwässer</i>			
Niedersachsen	1997 - heute	$10^{-9} - 10^{-8}$	[3–7]
Ostseeraum	1999	$10^7 - 10^9$ Atome/l	[41]
Schweden	1999	$10^{-8} - 10^{-7}$	[42]
Rhein	1996	$10^{-8}$	[43]
England, Deutschland	1997, 1999	$10^{-8}$	[44]

---

Trotz der vielen Untersuchungen gibt es jedoch nur wenige Daten für Deutschland. Besonders flächendeckende Untersuchungen (Boden) oder Zeitreihen die ganz Deutschland abdecken sind bisher nicht durchgeführt worden. Um eine zukünftige Entwicklung des  $^{129}\text{I}$ -Eintrags beurteilen zu können, muss deshalb eine umfassende Datengrundlage geschaffen werden. Dies ist auch für eine Abschätzung der potenziellen Dosis durch  $^{129}\text{I}$  wichtig.

## 2 Theoretischer Hintergrund

In diesem Abschnitt werden die allgemeinen Eigenschaften des Iods beschrieben. Zunächst wird über die chemischen Eigenschaften des Iods berichtet. Danach wird das Vorkommen in der Umwelt dargestellt, wobei insbesondere auf die Speziation eingegangen wird

### *Die Chemie des Iods*

Elementares Iod ist ein schwarzer, metallisch glänzender Feststoff, der beim Erwärmen zu einem violetten Dampf sublimiert. Entdeckt worden ist es 1811 vom französischen Chemiker B. Courtois. Er hat es aus Seetangasche erhalten die er mit konzentrierter Schwefelsäure behandelte. Iod hat einen Massenanteil in der Erdkruste von  $4,6 \cdot 10^{-5} \%$ . Am häufigsten kommt es als Lautarit ( $\text{Ca}(\text{IO}_3)_2$ ) im Chilesalpeter ( $\text{NaNO}_3$ ) vor. Im Meerwasser befindliches Iod wird in Algen und Schwämmen angereichert [1]. Iod kommt in den Oxidationsstufen -1, 0, +1, +3, +5 und +7 vor. Einen Überblick über die auftretenden Spezies liefert nachfolgende Tabelle 2:

**Tabelle 2: Übersicht über die verschiedenen Iodspezies [3, 45]**

Oxidationsstufe	Spezies	Name	Eigenschaften
-1	HI	Iodwasserstoffsäure	gasförmig
-1	$\Gamma$	anorganisches Iodid	flüchtig, sehr gut wasserlöslich
-1	$\text{CH}_3\text{I}$	organisches Iodid	flüchtig
0	$\text{I}_2$	elementares Iod	flüchtig
1	HIO	Hypoiodige Säure	flüchtig, unbeständig
3	$\text{HIO}_2$	Iodige Säure	sehr unbeständig
5	$\text{HIO}_3$	Iodsäure	stabil
5	$\text{IO}_3^-$	Iodat	sehr wenig flüchtig
7	$\text{HIO}_4$	Periodsäure	unbeständig
7	$\text{IO}_4^-$	Periodat	kaum flüchtig

Die dominierenden Spezies in der Umwelt sind Iodid und Iodat. Dies verdeutlicht auch das Eh-pH-Diagramm des Iods in Abbildung 3.

Iod ist ein Reinelement, d.h. es besitzt nur ein stabiles Isotop, das  $^{127}\text{I}$ . Es sind insgesamt 37 radioaktive Isotope bekannt. Viele dieser Isotope haben aufgrund ihrer sehr kurzen Halbwertszeiten keinerlei Anwendungen. Die Isotope  $^{123}\text{I}$ ,  $^{124}\text{I}$ ,  $^{125}\text{I}$  und  $^{131}\text{I}$  werden in der Medizin zur Krebsbehandlung und als Kontrastmittel in der Tomographie eingesetzt. Sie werden außerdem zur Aufklärung chemischer Reaktionsmechanismen genutzt.



## Theoretischer Hintergrund

Auf natürlich Weise wird  $^{129}\text{I}$  hauptsächlich durch zwei Reaktionen gebildet. Zum einen durch die Spallation, d.h. Wechselwirkung mit energiereichen Teilchen der kosmischen Strahlung, von Xenon in der oberen Atmosphäre. Die andere Form ist die Spontanspaltung von Actiniden, besonders  $^{238}\text{U}$ . Diese beiden Reaktionen machen jeweils etwa 45 % des natürlich produzierten  $^{129}\text{I}$  aus [10].

Außerdem entsteht  $^{129}\text{I}$  durch die Spaltung von  $^{235}\text{U}$  mit thermischen Neutronen und Neutronenaktivierungsreaktionen von Tellur. Insgesamt ergibt sich daraus ein natürliches freies Inventar von 263 kg. Weitaus mehr  $^{129}\text{I}$  liegt gebunden vor, woraus sich ein Gesamtinventar von 50.000 kg ergibt [24].

### Iod in der Umwelt

In der Umwelt ist Iod nahezu überall zu finden. Aufgrund seiner chemischen Eigenschaften findet ein ständiger Austausch zwischen den Kompartimenten statt. Einen schematischen Überblick liefert Abbildung 5:

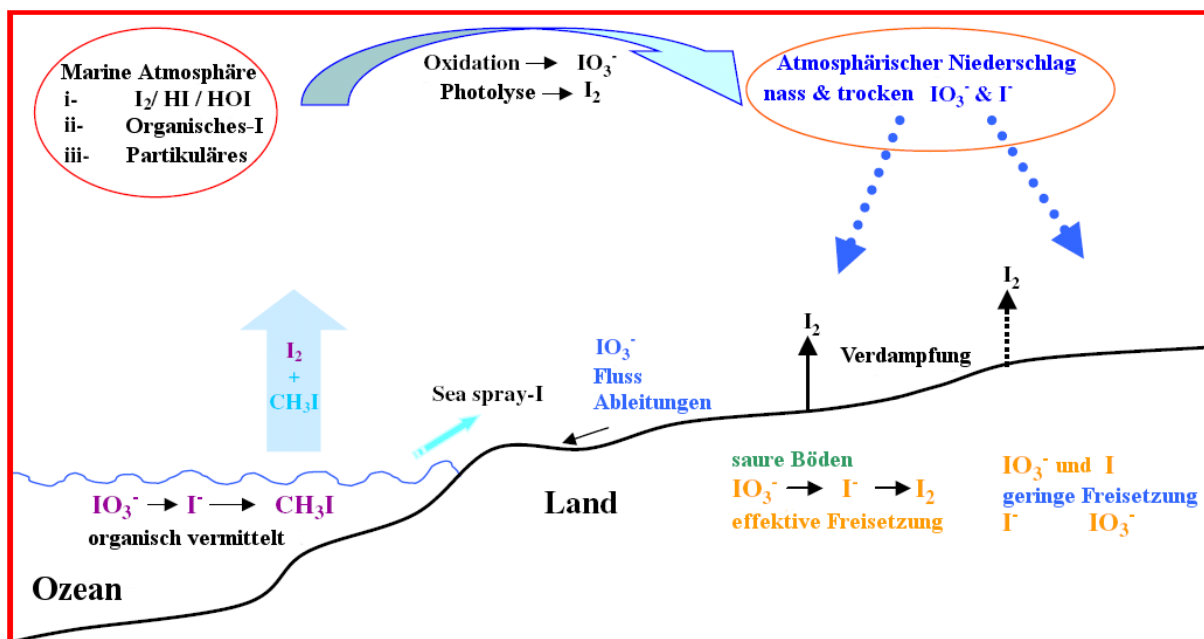


Abbildung 5: Übersicht über den globalen Iodkreislauf [41] (bearbeitet)

In die Atmosphäre gelangt Iod hauptsächlich aus dem Meer. In Küstennähe spielt dabei auch das sogenannte *sea-spray* eine Rolle. Dabei handelt es sich um von Wind und Brandung aufgewirbelte kleine Meerwassertropfen. Der dominierende Iodeintrag in die Atmosphäre erfolgt jedoch durch die Bildung von flüchtigen Iodspezies. Dabei spielen Methyljod, welches durch Algen gebildet wird und elementares Iod die größte Rolle. In der Gasphase können

diverse photochemische und oxidative Prozesse ablaufen. Es kommt außerdem zur Sorption an Aerosolpartikeln. Die durchschnittliche Verweilzeit in der Atmosphäre beträgt für gasförmiges anorganisches Iod 10 Tage, für gasförmiges organisches Iod 18 Tage und für partikuläres Iod 14 Tage [46–48].

Das Iod wird sowohl durch nasse (Regen und Schnee) als auch durch trockene (Aerosolpartikel) Deposition aus der Atmosphäre entfernt. Im Regen finden sich laut Whitehead durchschnittliche  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen zwischen 1,5 - 2,5  $\mu\text{g/L}$  in Regionen die nicht direkt an der Küste liegen. Dabei liegt das Iod hauptsächlich als Iodid und Iodat vor [46]. Hou hat im Regenwasser Iodid, Iodat und organisches Iod untersucht. Die Trennung erfolgte über ein Ionenaustauscherharz, wobei das organische Iod als ungeladen betrachtet wurde. In seiner Studie ist Iodat die dominierende Spezies im Niederschlag [23].

Santos gibt den Gehalt an stabilem Iod in Aerosolen mit 1 - 7  $\text{ng/m}^3$  an [30]. Diese Angabe stimmt gut mit der von Englund überein, wo 0,2 - 10  $\text{ng/m}^3$   $^{127}\text{I}$  als Gehalt in Aerosolen angegeben wurden [29]. In Aerosolen finden sich hauptsächlich organisch-gebundene Iodspezies gefolgt von Iodid und Iodat. Das stabile Iod ist von Gilfedder mit deionisiertem Wasser extrahiert und Iodid und Iodat durch Ionenchromatographie in Verbindung mit einem induktiv gekoppelten Massenspektrometer (IC-ICP-MS) sowie der Gesamtiodgehalt über ICP-MS bestimmt worden. Aus der Differenz wurde der Gehalt an organisch-gebundenem Iod bestimmt. In derselben Studie hat Gilfedder auch Regen und Schnee untersucht und kommt zu denselben Ergebnissen wie in den Aerosolen. Es findet sich jedoch vergleichsweise weniger organisch-gebundenes Iod im Regen und im Schnee [49].

Der Iodgehalt im Boden wird zum einen durch den Eintrag und zum anderen durch die Fähigkeit des Bodens das Iod gegen Auswaschung und Verflüchtigung festzuhalten bestimmt. Die dafür relevanten Bodenparameter werden in Abschnitt 4.1.4 behandelt. Den mittleren Iodgehalt im Oberboden gibt Whitehead mit 5  $\text{mg/kg}$  an [46]. Hou gibt eine mittlere Iodkonzentration von 1 - 3  $\mu\text{g/g}$  für alle Bodenschichten an [37]. Bei der Messung von Iod in fünf Bodenprofilen aus Deutschland hat Aumann für alle Standorte eine mit der Tiefe relativ konstante Iodkonzentration für stabiles Iod gefunden [34]. Wie auch dem Eh-pH-Diagramm (Abbildung 3) zu entnehmen ist, ist Iodid die dominierende Spezies in den meisten Böden. In sehr alkalischen Böden in trockenen Regionen ist allerdings Iodat die vorherrschende Spezies [46]. Es lassen sich außerdem gelöste iod-organische Verbindungen (Humin- und Fulvosäuren) im Bodenwasser finden [37].

Stabiles Iod im Flusswasser hat drei Quellen, den oberflächlichen Ablauf, oberflächennahes Grundwasser und Einleitungen von Abwässern. Die Konzentration in Flüssen ohne

## **Theoretischer Hintergrund**

---

menschliche Einflüsse liegt unterhalb von 3 µg/L. In der Nähe von großen Städten lassen sich jedoch Konzentrationen zwischen 15 - 20 µg/L finden [46]. Die vorherrschende Spezies im Flusswasser ist laut einer Studie von Gilfedder gelöstes organisch-gebundenes Iod, gefolgt von Iodat und Iodid. Dabei sind die Gehalte von Iodid und Iodat mittels IC-ICP-MS bestimmt worden und der Gesamtgehalt an Iod mittels ICP-MS. Die Differenz der Ergebnisse ist dem gelösten organisch-gebundenen Iod zugeschrieben worden [50].

### 3 Analysemethoden

In diesem Abschnitt wird die Funktionsweise der verwendeten Messgeräte erläutert. Dabei werden die wichtigsten Komponenten eines jeden Gerätes erklärt und die Herausforderungen bei der Messung von Iod herausgearbeitet. Auf die verwendeten Parameter sowie die genaue Durchführung der Messungen wird in Abschnitt 4.2 eingegangen.

#### 3.1 Induktiv gekoppeltes Plasma - Massenspektrometrie

Das ICP-MS besteht aus fünf Hauptkomponenten. Durch die Probenzufuhr gelangt die Probe in das Messgerät. Mit Hilfe der Ionisationseinheit, dem ICP, wird die Probe erst atomisiert und anschließend ionisiert. Das Interface ermöglicht den Übergang in den Hochvakuumbereich. In der Separationseinheit, in diesem Fall ein Quadrupol, werden die Ionen selektiert. Im Detektor wird anschließend das resultierende Messsignal aufgenommen. Abbildung 6 zeigt schematisch den Aufbau eines ICP-MS:



Abbildung 6: Schematischer Aufbau eines ICP-MS

##### 3.1.1 Probenzufuhr

Die Probenzufuhr erfolgt in der Regel in Form wässriger Lösungen. Es ist aber auch möglich, gasförmige Proben oder Feststoffe zu messen. Dafür muss das Einlasssystem entsprechend angepasst werden [51]. Im Folgenden wird jedoch nur auf die Zufuhr von flüssigen Proben eingegangen.

Die Proben werden in einen Zerstäuber gepumpt, wo sie in feine Tröpfchen zerteilt werden. Die feinen Tröpfchen werden von einem Trägergasstrom, welcher meist identisch mit dem Plasmagas ist, in das Plasma transportiert und dort ionisiert. Zu große Tröpfchen werden an einer Prallplatte abgefangen, sodass eine gleichmäßige Probenzufuhr ins Plasma erfolgt [52]. Dabei muss darauf geachtet werden, dass keine Analytrückstände im Einlasssystem zurückbleiben. Dieser sogenannte Memoryeffekt kann beim Iod bereits bei sehr geringen Konzentrationen auftreten, da es sehr leicht flüchtig ist und gut an Oberflächen anhaftet. Dies hätte eine spätere Freisetzung des Analyten und somit eine Erhöhung des Untergrunds zur Folge. Es ist also notwendig, bei der Messung von Iod eine Untergrundkorrektur durchzuführen. Näheres wird in Abschnitt 4.2.1 erläutert.

### 3.1.2 Ionisation

Die Ionisation der Probenatome erfolgt in einem induktiv gekoppelten Plasma (Abbildung 7). Die Plasmafackel besteht aus drei Röhren. Im äußeren Rohr wird das Plasmagas (Argon) zugeführt, welches mit Hilfe einer Hochfrequenzspule ionisiert wird. Zusätzlich wird ein Magnetfeld erzeugt, um das Plasma zu fokussieren. Im mittleren Rohr wird das Hilfsgas eingeleitet, welches einen Wirbel im Induktionsfeld erzeugt, durch den sich das Plasma

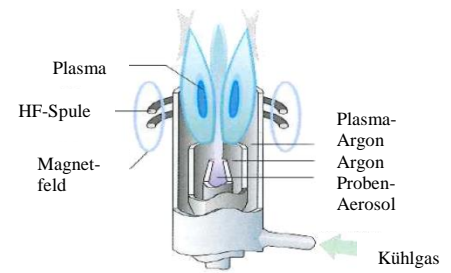


Abbildung 7: Induktiv gekoppeltes Plasma [52]

ringförmig ausbildet. Das Probenaerosol wird durch das innere Rohr eingeleitet. Es trifft somit axial auf das Plasma, an dem das Lösungsmittel verdampft und die Analyten zunächst atomisiert und anschließend ionisiert werden. Zu beachten ist dabei, dass gerade bei Messungen im Spurenelementbereich bereits kleine Unterschiede zwischen der Probenmatrix und den Standards zu Problemen führen können. Diese Matrixeffekte können z.B. durch unterschiedliche pH-Werte oder Begleitsubstanzen ausgelöst werden [51, 52]. Beim Iod, insbesondere beim Iodid, wie bei den durchgeführten Messungen der Fall, ist vor allem der pH-Wert relevant. Durch eine pH-Wert Änderung in der Probe vom basischen ins saure kann Iodid unter oxidativen Bedingungen zu gasförmigem elementarem Iod oxidiert werden (Vergl. Eh-pH-Diagramm in Abbildung 3). Das Iod könnte sich so in der Gasphase anreichern. Dies hätte einen größeren Analyteintrag in das Probenaerosol zur Folge als es eigentlich der Fall sein sollte. Es würde mehr Iod detektiert als in der Lösung tatsächlich enthalten ist [4]. Bei der Iodmessung wird deshalb die Matrix der Standards so gut wie möglich an die Proben angepasst. Außerdem wird ein interner Standard verwendet. Dabei handelt es sich meist um eine Substanz, welche in der Probe nicht enthalten ist. Sie wird der Probe in einer bestimmten Konzentration zugeben, um die Einflüsse der Probenmatrix zu korrigieren. Für die Iodmessung wird jedoch das im Plasmagas enthaltene Xenon als interner Standard verwendet. Dadurch können z.B. kleine Veränderungen in der Matrix korrigiert werden. Da die Leistung des Plasmas über einen längeren Messzeitraum nicht immer gleichmäßig ist, wird außerdem eine Driftkorrektur mit einem externen Standard durchgeführt. Dieser wird in bestimmten Abständen zwischen den Proben gemessen und dadurch das Messsignal korrigiert.



### 3.1.3 Separation

Um vom Plasma in den Bereich der Massenfiterung zu kommen, werden die gebildeten Ionen durch zwei Lochblenden geleitet. Die erste Blende, der sogenannten *sampler*, extrahiert die Ionen aus dem Plasma und leitet sie in den Bereich des Vorvakuums. Durch die zweite Lochblende, den *skimmer*, werden die Ionen in den Bereich des Quadrupols

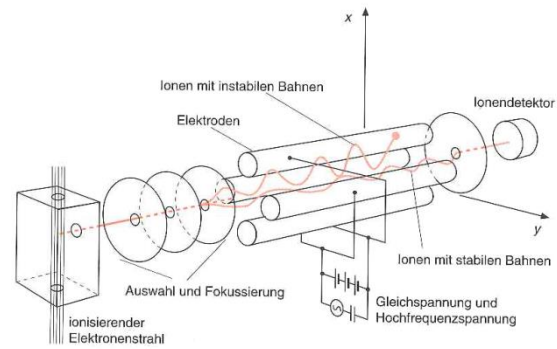


Abbildung 8: Quadrupol [51]

geleitet, wo ein Hochvakuum herrscht [52]. Der Quadrupol besteht aus vier Elektroden; meist Metallstäbe. Die jeweils gegenüberliegenden sind an eine positive bzw. negative Gleichspannungsquelle angeschlossen. Der Gleichspannung ist jeweils eine Wechselspannung überlagert, welche um  $180^\circ$  phasenverschoben ist. Durch Variation der Spannungen können jeweils nur Ionen mit einem bestimmten Masse zu Ladungsverhältnis ( $m/z$ -Verhältnis) den Quadrupol auf stabilen Bahnen passieren. Alle anderen Ionen werden an den Stäben neutralisiert. Somit gelangen immer nur bestimmte Ionen in den Detektor [53]. Die schematische Darstellung eines Quadrupols ist in Abbildung 8 gezeigt. Interferenzen können dadurch entstehen, dass mehrere Elemente oder Moleküle dasselbe  $m/z$ -Verhältnis aufweisen. Isobare (Elemente mit gleicher Massenzahl) Interferenzen können beim  $^{127}\text{I}$  nicht auftreten, da es das einzige stabile Isotop mit einer Masse von 127 g/mol ist. Interferenzen durch Moleküle sind bei dieser hohen Massenzahl ebenfalls sehr unwahrscheinlich, sodass in dieser Hinsicht keine Probleme auftreten können. Würde das  $^{129}\text{I}$  mittels ICP-MS gemessen werden, gäbe es Schwierigkeiten durch die Interferenz mit dem  $^{129}\text{Xe}$ . Dies ist einer der Gründe, warum  $^{129}\text{I}$  in Umweltproben nur selten mittels ICP-MS gemessen wird.

### 3.1.4 Detektion

Zur Detektion der selektierten Ionen wird ein Sekundärelektronenvervielfacher (SEV) verwendet. Dabei treffen die Ionen auf eine Konversionsdynode. Durch das Auftreffen eines Ions werden auf der Konversionsdynode zwei bis drei Elektronen erzeugt. Diese lösen in der nachfolgenden Dynodenkaskade eine Elektronenlawine aus, was eine Verstärkung des Signals bewirkt. Je nach Stärke des ankommenden Ionenstrahls kann das Signal am Ende der Kaskade (Puls-Modus) oder bei sehr hohen Ionenströmen bereits vorher gemessen werden (Analog-Modus) [51].

## 3.2 Beschleunigermassenspektrometrie

Dieser Abschnitt beschreibt den Aufbau eines AMS. Es wird dabei insbesondere auf den Aufbau des verwendeten Systems „Tandy“ an der ETH Zürich eingegangen. Der schematische Aufbau des „Tandy“ ist in Abbildung 9 dargestellt. Die einzelnen Komponenten werden in den folgenden Abschnitten erläutert.

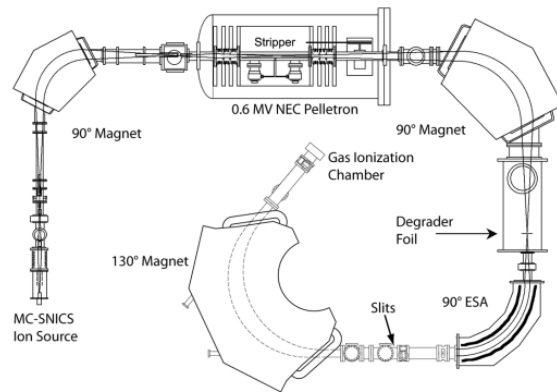


Abbildung 9: Schematische Darstellung des "Tandy" AMS

### 3.2.1 Ionisation

Die Ionisation der Proben für die AMS erfolgt mit Hilfe einer Cäsium-Sputter-Ionenquelle. Dabei wird in einem geheizten Reservoir Cäsiumdampf erzeugt, welcher in die Sputter-Ionenquelle geleitet wird. Ein Teil des Cäsiums wird dabei an einem stark erhitzten Ionisator ionisiert. Ein anderer Teil des Cäsiums setzt sich auf der gekühlten Kathode ab, in der sich die Probenziele befinden (Abbildung 10). Die gebildeten Cäsiumionen werden zur Kathode hin beschleunigt und schlagen Teilchen aus den Probenziele heraus. Dabei können, je nach Element, negative, neutrale oder positiv geladene Teilchen entstehen. Die neutralen und positiv geladenen Teilchen können bei Durchtritt durch die kondensierte Cäsiumschicht Elektronen aufnehmen und werden so negativ geladen [54]. An dieser Stelle werden bereits alle Elemente abgetrennt, die keine negativen Ionen bilden können. Im Falle des Iods ist das z. B.  $^{129}\text{Xe}$ , welches die Messung stören würde. Die Proben müssen demnach für die Messung als sehr reiner Feststoff vorliegen. Dies erfordert eine aufwendige Probenvorbereitung. Dabei muss zum einen der Analyt von der Matrix getrennt werden und zum anderen darf es nicht zu Verlusten des Analyten kommen. In den meisten Fällen muss deshalb mit Ausbeutetracern gearbeitet werden. Beim  $^{129}\text{I}$  wird dafür  $^{125}\text{I}$  verwendet, worauf in Abschnitt 4.1.3 näher eingegangen wird. Aufgrund der meist geringen Analytmengen müssen außerdem, auch beim Iod, meist Trägersubstanzen verwendet werden. Das Ergebnis muss daher korrigiert werden.



Abbildung 10: Probenrad in der Ionenquelle

### 3.2.2 Niederenergie-Massenspektrometer

Eine erste Separation der negativen Ionen erfolgt gemäß ihrem  $m/z$ -Verhältnis im Niederenergie-Massenspektrometer. Dort werden die Ionen in einem Magnetfeld in Abhängigkeit von ihrer Masse auf bestimmte Bahnen gelenkt. Dabei wirkt zum einen die Lorentzkraft ( $F_L$ ):

$$\vec{F}_L = \vec{B} \times \vec{v} \cdot z \quad \text{Gl. 1}$$

im Magnetfeld  $B$  mit  $v$  = Geschwindigkeit und  $z$  = Ladung des Ions und zum anderen der Betrag der Zentripetalkraft ( $F_Z$ ):

$$F_Z = \frac{m \cdot v^2}{r} \quad \text{Gl. 2}$$

mit  $m$  = Masse des Teilchens und  $r$  = Ablenkradius. Die beiden Kräfte stehen im Gleichgewicht zueinander. Die kinetische Energie der Ionen ist proportional zur angelegten Spannung ( $U$ ) mit:

$$\frac{1}{2} \cdot m \cdot v^2 = z \cdot U \quad \text{Gl. 3}$$

Durch Gleichsetzen der Lorentz- und Zentripetalkraft und anschließendes Einsetzen in Gleichung 3 ergibt sich für die Ablenkung der Ionen im Magnetfeld:

$$\frac{m}{z} = \frac{B^2 \cdot r^2}{2 \cdot U} \quad \text{Gl. 4}$$

Die Ionen lassen sich demnach durch Variation des Magnetfeldes oder der Spannung separieren. Im Fall des „Tandy“-AMS werden die Ionen mit dem gewünschten  $m/z$ -Verhältnis um  $90^\circ$  abgelenkt. Es werden abwechselnd  $m/z$ -Verhältnisse von 129 und 127 separiert. Der  $^{127}\text{I}$ -Strahl wird außerdem gepulst in einen Faraday-Becher geleitet um die Transmission durch den Beschleuniger zu messen [8, 51].

### 3.2.3 Beschleuniger

Der Beschleuniger im „Tandy“-AMS ist ein Tandem-Beschleuniger, bei dem der Ladungstransport über einen Pelletron-Bandgenerator (Abbildung 11) erfolgt. Dabei werden die Ladungen über eine Kette aus Metallkugeln, dem Pelletron, zum Terminal transportiert. Da der Terminal positiv geladen werden soll, werden, durch Influenz erzeugte, positive Ladungen von der Erde zum Terminal transportiert. Um eine höhere Terminalspeisung zu realisieren, werden gleichzeitig negative Ladungen vom Terminal zur Erde übertragen. Um die maximal mögliche Hochspannung zu erhöhen, werden der Hochspannungsgenerator und das Beschleunigerrohr in einem Drucktank mit Schutzgasatmosphäre betrieben. Beim „Tandy“ wird mit einer maximalen Hochspannung von 0,6 MV gearbeitet. Als Schutzgas wird beispielsweise Schwefelhexafluorid ( $\text{SF}_6$ ) eingesetzt. Bei einem Tandem-Beschleuniger wird das Prinzip der Beschleunigung mittels Hochspannung gleich zweimal ausgenutzt. Zuerst werden die negativen Ionen zur positiven Spannung der Terminalelektrode hin beschleunigt. Dort passieren die Ionen den sogenannten *stripper* und werden zu positiven Ionen umgeladen. Beim *stripper* handelt es sich um ein Gas, in der Regel Argon oder Helium, oder eine dünne Folie. Durch Kollision mit dem *stripper* werden die äußeren Elektronen abgestreift, sodass positiv geladene Ionen entstehen. Molekülonen werden dadurch zerstört. Dies ist nur der Fall, wenn die Dichte des *stripper*-Gases hoch genug ist. Da bei der Iodmessung der Ladungszustand  $2+$  separiert wird, muss mit einer Gasdichte von  $0,2 \text{ g/cm}^2$  Helium gearbeitet werden, um Interferenzen durch Molekülonen auszuschließen [56]. Die nun positiven Ionen werden wiederum von der Terminalelektrode zur Erde hin beschleunigt. Anschließend werden die hochenergetischen Ionen im Hochenergie-Massenspektrometer weiter analysiert [55].

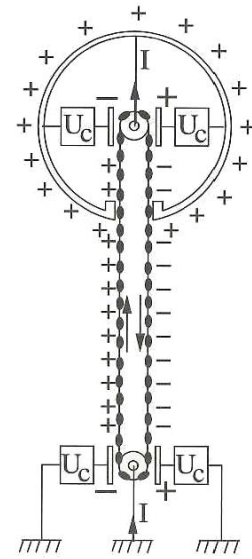


Abbildung 11: Pelletron-Bandgenerator [55]

### 3.2.4 Hochenergie-Massenspektrometer

Bei dem Hochenergie-Massenspektrometer handelt es sich um ein doppeltfokussierendes Massenspektrometer. Dabei werden sowohl ein magnetischer als auch ein elektrostatischer Analysator (ESA) verwendet. Im „Tandy“-AMS durchlaufen die Ionen zuerst das Magnetfeld, wo sie, wie bereits beim Niederenergie-Massenspektrometer beschrieben, nach ihrer Masse getrennt werden. Im nachfolgenden ESA werden die Ionen gemäß ihrer kinetischen Energie

fokussiert. Der Analysator besteht aus zwei leicht gekrümmten Metallplatten an denen jeweils ein Gleichstrompotential anliegt. Dadurch können nur Ionen mit bestimmten kinetischen Energien den ESA-Spalt passieren [53].

### 3.2.5 Detektion

Zur Detektion der Ionen wird ein Gasionisationsdetektor, auch Gasionisationskammer genannt, verwendet, wie in Abbildung 12 gezeigt ist. Es handelt sich dabei um einen  $\Delta E - E_{\text{Rest}}$  Detektor. Dabei steht  $\Delta E$  für den Energieverlust der Ionen und  $E_{\text{Rest}}$  für die Restenergie. Die Ionen treten dabei durch ein dünnes Fenster, beim „Tandy“ bestehend aus

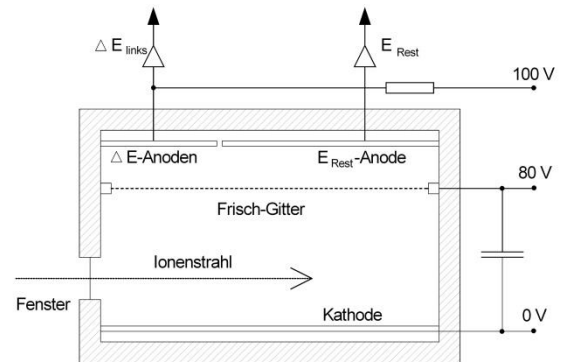


Abbildung 12: Gasionisationsdetektor

Siliziumnitrid, in eine gasgefüllte Kammer ein. Als Messgas wird Isobutan verwendet [57]. Da jedes Element einen anderen Energieverlust bei der Wechselwirkung mit Materie aufweist, kann über die Restenergiemessung z.B. zwischen Isobaren unterschieden werden [51, 58].

## 3.3 Gammaspektrometrie

Die Gammaskpektrometrie wird in dieser Arbeit zur Bestimmung der chemischen Ausbeute bei mehreren Aufarbeitungsmethoden eingesetzt. Sie wird deshalb an dieser Stelle kurz erläutert.

### 3.3.1 Messprinzip

Gammastrahlen bestehen aus hochenergetischen Photonen die beim Zerfall vieler Radionuklide gebildet werden. Die Energie der Gammaquanten ist dabei diskret, d.h. sie haben eine konstante Energie, und sind elementspezifisch. Dadurch ist es möglich, Radionuklide anhand ihrer Gammalinien zu unterscheiden. Bei der Detektion muss sowohl die Energie der Strahlung als auch die Impulshäufigkeit registriert werden. Für die Detektion von Gammastrahlung werden entweder Halbleiter- oder Szintillationsdetektoren eingesetzt [53].

### 3.3.2 Detektor

Für die Messung der chemischen Ausbeute wird  $^{125}\text{I}$  verwendet. Es besitzt eine Halbwertszeit von 60 Tagen und eine Gammalinie bei 35 keV. Damit besitzt es eine sehr niedrige Gammaenergie welche bereits im Bereich niederenergetischer Röntgenstrahlung liegt.

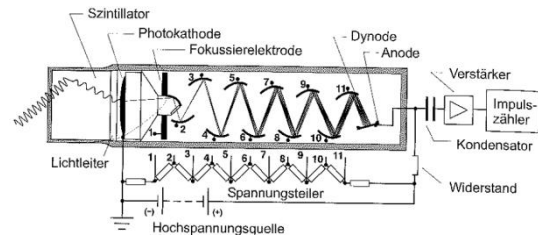


Abbildung 13: Szintillationsdetektor [59]

Für die Detektion wird deshalb ein Szintillationsdetektor eingesetzt, der in Abbildung 13 schematisch dargestellt ist. Die Gammaphotonen treffen dabei auf den Szintillatorkristall, in diesem Fall einen mit Thallium dotierten Natriumiodidkristall. Durch die Absorption der  $\gamma$ -Energie werden Elektronen vom Valenz- ins Leitungsband angeregt und hinterlassen ein Loch im Valenzband. Koppelt nun ein Elektron, dessen Energie zu gering ist um ins Leitungsband angeregt zu werden an das Loch bildet sich ein Elektronen-Loch-Paar, ein sogenanntes Exciton. Durch die Dotierung mit Thalliumatomen entstehen neue Energieniveaus zwischen Valenz- und Leitungsband. Die Excitonen wandern im Kristall bis sie auf die Dotierungsatome (auch Aktivatoratome genannt) treffen. Sie können dort rekombinieren und geben ihre überschüssige Energie in Form von Lichtblitzen (Szintillationen) ab, welche dann detektiert werden können. Dafür wird eine Photokathode verwendet, wodurch Elektronen erzeugt werden. Diese werden anschließend, wie beim ICP-MS, durch einen Sekundärelektronenvervielfacher verstärkt und dann gemessen [59, 60].

# 4 Experimenteller Teil

Um den atmosphärischen Eintrag von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in ganz Deutschland erfassen zu können, müssen Niederschlags- und Aerosolproben gesammelt werden. Dafür sind ein geeigneter Probenahmezeitraum und passende Beprobungsintervalle festzulegen. Das aus den Einträgen folgende Iodinventar im Boden wird durch die Entnahme von Bodenproben bestimmt. Dazu muss ein Probenahmeverfahren entwickelt und passende Bohrstöcke hergestellt werden. Um Zusammenhänge zwischen der Iodadsorption und den verschiedenen Bodenbestandteilen erkennen zu können, ist es notwendig, die Bodenparameter zu analysieren. Zur Festlegung des Austrags durch Fließgewässer müssen weiterhin Proben an den großen deutschen Wasserstraßen entnommen werden. Auch hierfür werden passende Probenahmeintervalle benötigt.

Die Analysen werden mit Hilfe der bereits am IRS etablierten Methoden durchgeführt [3–8]. Ziel dabei ist es, diese zu optimieren und an die Anforderungen der untersuchten Proben anzupassen.

## 4.1 Probenahme

Im folgenden Abschnitt wird zunächst die Herkunft der jeweiligen Proben behandelt. Es wird die Lage der Probenahmeorte beschrieben sowie die Kriterien für die Probenahme genannt. Danach folgen die Durchführung der Probenahme und anschließend die Vorbereitung der Proben für die Analyse.

### 4.1.1 Herkunft

Sämtliche Proben sind an unterschiedlichen Orten gesammelt worden. Die Probenahmestellen wurden so ausgewählt, dass sie möglichst gleichmäßig über Deutschland verteilt sind. Dafür sind Kooperationen mit verschiedenen Institutionen vereinbart worden, die einen Teil der Proben zur Verfügung gestellt bzw. geeignete Probenahmeflächen vermittelt haben.

#### 4.1.1.1 Niederschlag

Die Niederschlagsproben sind in Kooperation mit zehn Radioaktivitätsmessstellen des Deutschen Wetterdienstes (DWD) gesammelt worden (Schleswig, Norderney, Hannover-Langenhagen, Essen-Bredeney, Potsdam, Görlitz, Offenbach, Nürnberg, Lahr,

München-Oberschleißheim). Die genaue Lage der Sammelstellen ist auf der Karte in Abbildung 14 zu sehen.



Abbildung 14: Probenahmestellen der Niederschläge

### 4.1.1.2 Aerosol

Die auf Filtern gesammelten Aerosole sind von den vier Spurenmessstellen des integrierten Mess- und Informationssystems (IMIS) zur Überwachung der Umweltradioaktivität in der Luft des Bundesamtes für Strahlenschutz und zusätzlich von der Wetterstation in Langenhagen (roter Punkt in Abbildung 15) zur Verfügung gestellt worden. Die Messstelle in Braunschweig (North) wird von der Physikalisch Technischen Bundesanstalt (PTB) betrieben, die Messstellen in Potsdam (East) und Offenbach (Central) vom DWD und die Messstelle auf dem Schauinsland (1284 m ü. NHN; Freiburg, South) vom Bundesamt für Strahlenschutz (BfS). Die Lage der Sammelstellen wird in Abbildung 15 verdeutlicht.



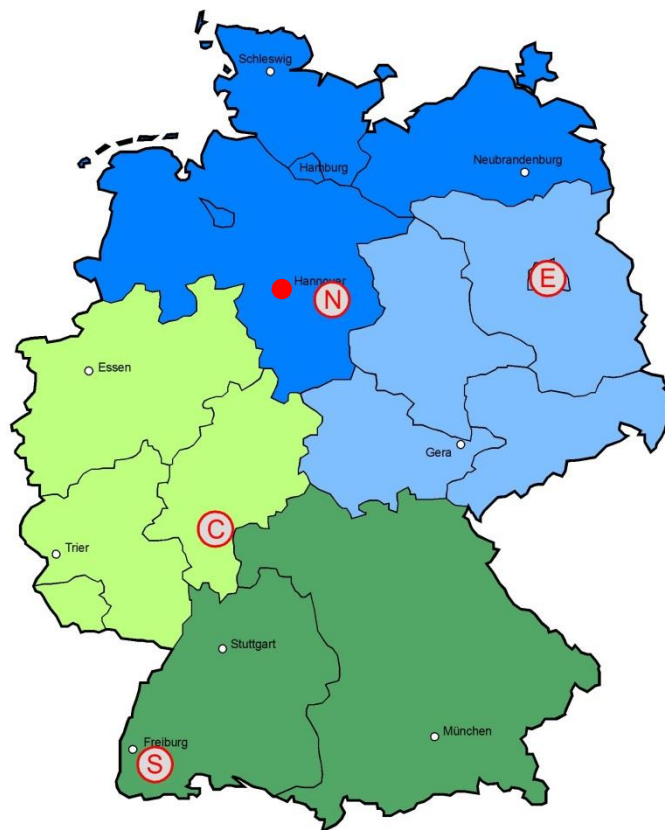


Abbildung 15: Sammelstellen der Aerosole (N = North, E = East, C = Central, S = South, roter Punkt = Hannover-Langenhagen)

### 4.1.1.3 Boden

Voraussetzung für die Entnahme von Bodenproben ist, dass der Boden möglichst wenig gestört wurde. Das bedeutet, dass er für einen Zeitraum von mehreren Jahren, im Idealfall Jahrzehnten, nicht umgebrochen worden ist, also keine Homogenisierung der Bodenschichten stattgefunden hat. Landwirtschaftliche Nutzung in Form von Tierhaltung sowie Düngung der Flächen hat keinen Einfluss auf deren Auswahl. Soweit dies möglich gewesen ist, sind auf den Flächen der Niederschlags- und Aerosolsammelstellen Bodenproben entnommen worden. Außerdem sind auf weiteren Messfeldern des DWD Proben gesammelt worden, da es sich dabei um Rasenflächen handelt, die viele Jahren nicht verändert worden sind. Zusätzlich sind, in Zusammenarbeit mit den jeweiligen Landesämtern, sogenannte Bodendauerbeobachtungsflächen beprobt worden. Es handelt sich dabei meist um landwirtschaftlich genutzte Grünland-Flächen an denen Veränderungen der Bodeneigenschaften z. B. der Gehalt an organischem Kohlenstoff oder Schadstoffeinträge überwacht werden. Dazu musste die Zustimmung der zuständigen Gemeinden oder Pächter eingeholt werden. Bei diesen Flächen

ist die Nutzung über Jahrzehnte dokumentiert, sodass eine Homogenisierung der Bodenschichten für diesen Zeitraum auszuschließen ist. Die Lage der Probenahmestellen (rot) und die Standorte mit Niederschlags- bzw. Aerosolsammlung (blau) zeigt Abbildung 16. Genaue Angaben zur Nutzung der jeweiligen Flächen sind im Anhang 7.4 (Tabelle 16) zu finden. Die Probenahmestelle in Aachen (gelb) wird gesondert behandelt, da die Fläche ca. 2 Jahre vor der Probenahme neu angelegt worden ist. Sie wird deshalb als Beispiel für eine homogenisierte Fläche betrachtet.



Abbildung 16: Probenahmeorte der Bodenproben (rot = Entnahmestellen für Boden, blau = Entnahmestellen für Boden und Niederschlag und/oder Aerosol, gelb = homogenisierte Fläche

### 4.1.1.4 Flusswasser

Die Flusswasserproben sind vom Bundesamt für Gewässerkunde (BfG) an Probenahmestellen der Bundeswasserstraßen entnommen worden. Alle Probenahmestellen lagen außerhalb des Tideneinflussbereichs um einen Eintrag von Meerwasser in die Proben auszuschließen. Es sind an insgesamt fünfzehn Probenahmestellen an Ems, Weser, Elbe, Rhein, Donau und Oder Proben entnommen worden, wie in Abbildung 17 gezeigt ist.

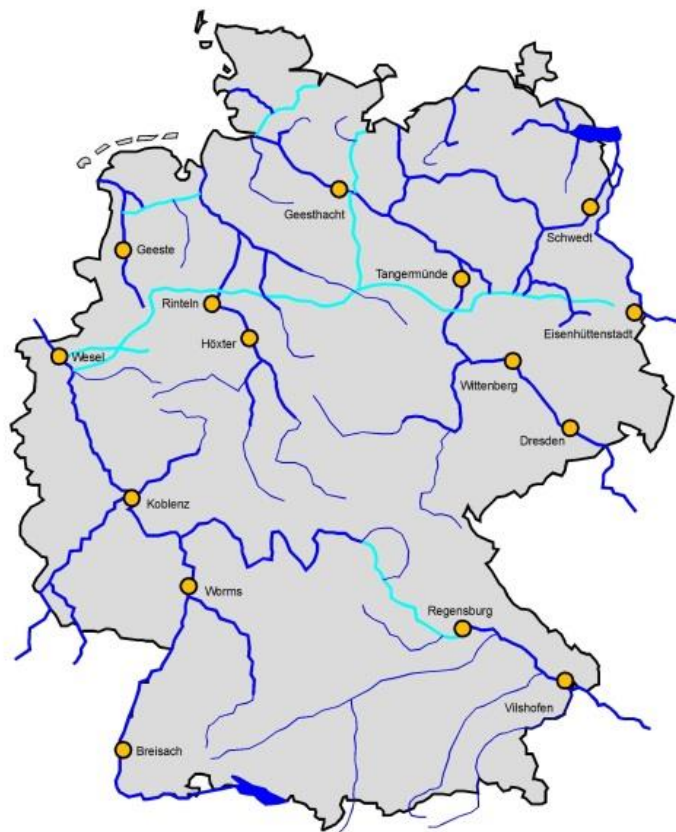


Abbildung 17: Probenahmestellen der Gewässerproben

### 4.1.2 Probenahme und Sammelzeiträume

Die Probenahme ist bei den mit der Zeit variierenden Probenarten (Niederschlag, Aerosol, Flusswasser) in regelmäßigen Abständen und bei den über längere Zeiträume konstanten Probenarten (Boden) einmalig durchgeführt worden. Die genaue Durchführung wird im folgenden Abschnitt erläutert.

#### 4.1.2.1 Niederschlag

Die Niederschlagsproben sind vom DWD in  $80\text{ cm} \cdot 80\text{ cm}$  ( $0,64\text{ m}^2$ ) großen Duschwannen (Abbildung 18) aufgefangen und in Polyethylen (PE)-Flaschen gesammelt worden. Diese sind täglich geleert und an Tagen ohne Niederschlag sind die Wannens mit 500 bzw. 1.000 ml deionisiertem Wasser gespült worden. Die Menge des Spülwassers ist nicht bei allen Stationen identisch, jedoch an den jeweiligen Stationen immer konstant gewesen.

Dadurch ist sowohl die nasse als auch die trockene Deposition erfasst worden. Es ist festgelegt worden, dass vom täglich gesammelten Niederschlag jeweils 5 % als Aliquot für die Iodanalyse entnommen wird. Die Proben sind zu Monatsproben zusammengefügt und in 21 PE-Flaschen gesammelt worden. Um einen Überblick über den zeitlichen Verlauf zu gewinnen, sind die Proben über einen Zeitraum von zwei Jahren (März 2011 - Februar 2013) genommen worden.



Abbildung 18: Niederschlagssammler

### 4.1.2.2 Aerosol

Um die Iodkonzentration in den Aerosolen messen zu können, sind diese auf Filtern abgeschieden worden. In dieser Arbeit wurden Filter aus zwei unterschiedlichen Filtersystemen untersucht. Von der PTB sind Aliquote der Polypropylenfilter (PP-Filter) aus einem *high volume sampler* (dt. Hochvolumensammler) zur Verfügung gestellt worden. Die anderen Stationen konnten von diesen Filtern keine Abschnitte abteilen. Stattdessen sind Glasfaserfilter aus den sogenannte Iodfallen (Abbildung 19) genutzt worden. Diese haben einen deutlich geringeren Durchsatz, siehe Anhang 7.4 (Tabelle 13). Die Iodfallen dienen standardmäßig dazu, gasförmiges  $^{131}\text{I}$  zu messen, falls dieses freigesetzt wird. Das ist z. B. bei den Reaktorunfällen in Tschernobyl und Fukushima der Fall gewesen. In den Iodfallen werden die Glasfaserfilter verwendet, um die eingesaugten Partikel abzufangen. Diese sind für die Analyse von partikelgebundenem Iod zur Verfügung gestellt worden. Die Filter sind je nach Standort zwischen einem Tag und einer Woche beaufschlagt worden. Die Zeit wie lange die Luft durch einen Filter gesaugt worden ist hing vom Sammelsystem und von der Partikelkonzentration in der angesaugten Luft ab. Die Aerosole sind analog zu den Niederschlägen von März 2011 bis Februar 2013 gesammelt und als Monatsproben zusammengefasst worden. Dies hat eine gute Vergleichbarkeit mit den Niederschlagsproben ermöglicht. Auf die Auswirkung der unterschiedlichen Probenahme-systeme auf die Ergebnisse wird in Abschnitt 5.2.2. näher eingegangen.



Abbildung 19: Iodfalle

### 4.1.2.3 Boden

Die Entnahme von Bodenproben ist jeweils einmal an jedem Standort durchgeführt worden. Um die Migration des  $^{129}\text{I}$  in die Tiefe analysieren zu können, sind mehrere Schichten bis in 50 cm Tiefe beprobt worden. Dafür ist folgendes Probenahmeverfahren entwickelt worden. Die Proben sind mit, eigens dafür hergestellten, Bohrstöcken genommen worden, wie in Abbildung 20 gezeigt. Je nach Schichtdicke haben die Bohrstöcke unterschiedliche Durchmesser, damit ca. dasselbe Volumen entnommen werden kann. Die beprobten Schichten sind 0-5 cm, 5-10 cm, 10-20 cm, 20-30 cm und 30-50 cm Tiefe. Vor der Beprobung ist der Bewuchs vorsichtig entfernt worden, damit kein Boden verloren ging. Es sind je nach Standort acht bis zwölf Bohrlöcher beprobt und die Proben anschließend zu Mischproben für die jeweiligen Tiefen vereinigt worden.



Abbildung 20: Bohrstock

### 4.1.2.4 Flusswasser

Die Flusswasserproben sind mit fest installierten Probenehmern entnommen worden. Von den jeweiligen Stationen sind monatlich große Probemengen entnommen und an die Zentrale des BfG in Koblenz geschickt worden. Es ist vereinbart worden, dort jeweils einen Liter des gesammelten Wassers in eine PE-Flasche für die Iodanalyse abzufüllen. Aufgrund der großen Probenmenge und der geringen Variation in den ersten Monatsproben sind die Proben in der Folge vor der Analyse zu Quartalsproben zusammengefasst worden.

## 4.1.3 Probenpräparation

In diesem Abschnitt werden die eingesetzten Aufarbeitungsmethoden und insbesondere deren Veränderungen zu früheren Arbeiten beschrieben. Da die Aufarbeitung für alle Arten von Wasserproben nahezu identisch gewesen ist, werden sie in einem Abschnitt beschrieben.

### 4.1.3.1 Wasser

Bei der Aufarbeitung der Wasserproben handelt es sich um ein bereits am Institut etabliertes Verfahren, welches unverändert übernommen worden ist. Um einen Verlust von Iod während der Lagerung auszuschließen sind die Proben mit Natronlauge versetzt worden, sodass die Konzentration 0,01 mol/l entspricht. Bei den Flusswasserproben geschah dies bereits beim Abfüllen in die PE-Flaschen. Dies ist bei den Regenwasserproben nicht möglich gewesen.

Diese sind von den DWD-Stationen kühl und dunkel gelagert (Kühlschrank) und nach ihrer Ankunft im Institut für Radioökologie und Strahlenschutz mit Natronlauge versetzt worden. Die Probenaliquote für die ICP-MS Messung sind danach lediglich durch einen Filter mit 0,45 µm Porendurchmesser filtriert worden. Für die AMS-Messung muss das Iod aufkonzentriert und mit Hilfe eines Ionenaustauscherharzes von der Matrix getrennt werden [8, 61]. Dazu ist den Proben Woodward Iod als Träger zugesetzt worden. Beim sogenannten Woodward Iod handelt es sich um elementares Iod, welches aus einer tief unter der Erde liegenden Sole gewonnen wird. Es hat am globalen Iodaustausch nicht teilgenommen und besitzt ein  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von  $10^{-14}$  [62]. Die Proben werden dann zunächst mit Calciumhypochlorit ( $\text{Ca}(\text{ClO})_2$ ) oxidiert, um das Iod vollständig zu Iodat umzusetzen. Anschließend erfolgt eine Reduktion zum Iodid mittels Natriumhydrogensulfit ( $\text{NaHSO}_3$ ) und Hydroxylammoniumchlorid ( $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$ ). Die Proben sind dann auf das mit Nitrat konditionierte Austauscherharz (DOWEX<sup>®</sup> 1X8, analytical grade) gegeben und nach der Elution als Silberiodid ausgefällt worden.

### 4.1.3.2 Aerosolfilter

Für die Aufarbeitung der Filterproben sind verschiedene Methoden eingesetzt worden, da die bisher am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz eingesetzte Methode teilweise sehr niedrige chemische Ausbeuten lieferte [3, 7]. Einige Proben sind deshalb, analog zu den Bodenproben, mit einer trockenen Veraschung behandelt worden. Eine genaue Beschreibung findet sich im nächsten Abschnitt. Im Gegensatz zu den Bodenproben sind die kleingeschnittenen Filter jedoch nicht direkt in das innere Quarzrohr gegeben worden, sondern in kleine Porzellanschiffchen gelegt. Dies hat den Grund, dass die Glasfaserfilter bei den hohen Temperaturen im Ofen schmelzen und sich mit dem Quarzglas verbinden würden. Bei den Porzellanschiffchen ist dieser Effekt nicht so stark und außerdem sind sie kostengünstiger, was den Austausch praktikabler macht.

Weiterhin ist auch nach Optimierungsmöglichkeiten bei der alkalischen Suspensionsmethode gesucht worden. Im Unterschied zu der von Szidat [7] beschriebenen Methode, ist beschlossen worden, das Probenaliquot für die ICP-MS Messung bereits vor der Extraktion mit Chloroform zu entnehmen, sodass bereits an dieser Stelle das Woodward Iod als Träger zugesetzt werden kann. Dadurch ist eine Verbesserung der Extraktion erreicht worden. Die Ausbeute hat jetzt konstant über 90 % gelegen. Bestimmt worden ist sie durch die Zugabe von  $^{125}\text{I}$ -Lösung vor dem Kochen der alkalischen Lösung und dem Vergleich mit einem Standard nachdem die Lösung erhitzt wurde. Ein Nachteil hat sich allerdings durch die deutlich höhere

Matrixbelastung der ICP-MS Probe ergeben, worauf an späterer Stelle noch eingegangen wird.

Sowohl bei der trockenen Veraschung als auch bei der optimierten Suspensionsmethode ist nicht sicher, ob dieses Verfahren zuverlässige Ergebnisse liefert. Da es für Iod in Aerosolen kein zertifiziertes Referenzmaterial gibt, kann nur überprüft werden, ob die beiden Methoden vergleichbare Ergebnisse liefern. Diese Fragestellung ist von Moor in seiner am IRS angefertigten Bachelorarbeit behandelt worden [63]. Es hat sich dabei herausgestellt, dass die Methoden signifikante Unterschiede in den Ergebnissen aufweisen. Moor kommt zu dem Schluss, dass die Eignung einer oder beider Methoden für die Aufarbeitung von Aerosolfiltern nur durch ein geeignetes Referenzmaterial geklärt werden kann, was jedoch bisher nicht zur Verfügung steht. Er findet keine Erklärung warum die Verbrennungsmethode höhere Werte geliefert hat. Um die Vergleichbarkeit mit den in diesem Projekt bearbeiteten Proben zu gewährleisten sind die Daten aus der alkalischen Suspensionsmethode für den Vergleich mit den anderen Standorten verwendet worden.

### 4.1.3.3 Boden

Das in den Bodenproben enthaltene Iod ist durch eine Trockenveraschung extrahiert worden. Diese Methode ist bereits in der Literatur beschrieben und soll hier nur kurz erläutert werden [3, 4, 7, 12].

Die Proben sind im Dunkeln bei Raumtemperatur getrocknet worden. Würde man die Proben bei höheren Temperaturen oder unter Lichteinwirkung trocknen, würde dies zu Analytverlusten führen. Bei dieser Trocknungsmethode sind die Proben nicht vollständig wasserfrei, sodass bei jeder Probe der Restwassergehalt am Tag der Verbrennung durch vollständige Trocknung eines Aliquots gemäß DIN ISO 11465 durchgeführt werden musste [64]. Die Einwaagen sind später mit dem Restwassergehalt korrigiert worden. Die luftgetrockneten Proben sind gemörsert und durch ein Sieb mit 2 mm Maschenweite gesiebt worden um den Skelettanteil des Bodens abzutrennen. Für die Iodextraktion sind, in Abhängigkeit von der Entnahmetiefe der jeweiligen Bodenschicht, verschiedene Einwaagen verwendet worden. Diese sind im Laufe der Arbeit angepasst worden, um in der AMS-Messung keine zu hohen Gehalte von  $^{129}\text{I}$  zu erhalten. Die angepassten Einwaagen und verwendeten Woodward Iod Mengen finden sich in Tabelle 3.

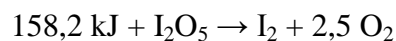


## Experimenteller Teil

Tabelle 3: Übersicht der verwendeten Einwaagen der Bodenproben

Entnahmetiefe [cm]	Einwaage [g]	Woodward Iod Zugabe [ $\mu\text{l}$ ]
0 - 5	15	200
5 - 10	15	200
10 - 20	20	100
20 - 30	20	100
30 - 50	30	100

Die eingewogenen Bodenproben sind in ein Quarzrohr gefüllt und eine  $^{125}\text{I}$ -Lösung als Ausbeutetracer darauf verteilt worden. Das Quarzrohr ist in ein weiteres Quarzrohr geschoben und schrittweise in einen auf  $1100\text{ }^\circ\text{C}$  geheizten Ofen gefahren worden. Währenddessen ist durch das innere Quarzrohr ein Gemisch aus Stickstoff und Sauerstoff geleitet worden, um das Iod zu oxidieren und das daraus gebildete gasförmige elementare Iod zur Absorptionslösung zu transportieren. Dabei bildet sich zunächst Diiodpentaoxid welches sich bei ca.  $300\text{ }^\circ\text{C}$  in die Elemente zersetzt [45]:



Gl. 5

Durch das äußere Quarzrohr ist reiner Sauerstoff geleitet worden, um eventuell entstandene Rußpartikel zu oxidieren. Das gasförmige Iod ist in einer basischen Absorptionslösung, bestehend aus Tetramethylammoniumhydroxid (TMAH, 30 %) und Ammoniumhydrogensulfit ( $\text{NH}_4\text{HSO}_3$ , 1 mol/L), aufgefangen worden. Der schematische Aufbau der Extraktionsapparatur ist in Abbildung 21 dargestellt:

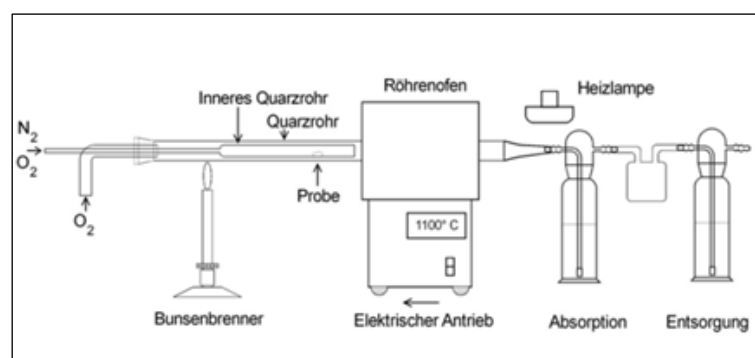


Abbildung 21: Schematischer Aufbau der Extraktionsapparatur für Bodenproben

Mit Hilfe einer Standardlösung die die gleiche Zusammensetzung wie die Absorptionslösung besitzt und mit derselben Menge Tracerlösung wie die Probe versetzt worden ist, ist die Ausbeute bestimmt worden. Aus der Absorptionslösung ist eine Probe für die ICP-MS



## Experimenteller Teil

Messung entnommen und aus der restlichen Lösung, nach Zugabe von Woodward Iod als Träger, das Iod als Silberiodid für die AMS-Messung ausgefällt worden.

Um die Funktionsweise der Methode zu überprüfen, ist in regelmäßigen Abständen das Referenzmaterial IAEA Soil-375 analysiert worden, welches einen zertifizierten Gehalt ( $0,0017 \pm 0,0004$  Bq/kg) an  $^{129}\text{I}$  besitzt. Die Ergebnisse dieser Überprüfung sind in Abbildung 22 dargestellt. Die ermittelten Werte für  $^{129}\text{I}$  liegen alle im zertifizierten Bereich. Die genauen Ergebnisse finden sich im Anhang 7.4 (Tabelle 19).

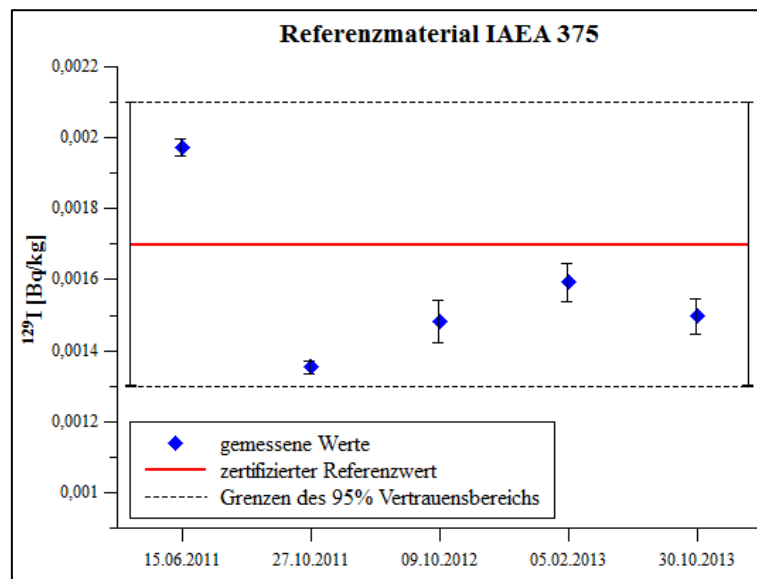


Abbildung 22: Ergebnisse der Bearbeitung von IAEA Soil-375

Die Abweichung der Probe vom 15.6.2011 von den anderen Proben könnte sich durch die Verwendung einer anderen Charge des Referenzmaterials erklären lassen. Ein Vergleich mit den von Daraoui in seiner Dissertation ermittelten Werten (13 Messungen) zeigt außerdem, dass die Werte bei mehr Wiederholungen ebenfalls innerhalb des Vertrauensbereichs schwanken, siehe Abbildung 113 im Anhang 7.4 [3].

### 4.1.4 Bedeutung der Bodenparameter

In diesem Abschnitt wird beschrieben, welche Bodenparameter in den gesammelten Bodenproben ermittelt worden sind. Für die Iodadsorption im Boden spielt dessen Zusammensetzung eine wichtige Rolle. Es wird diskutiert, welche Parameter für das Iod besonders relevant sind.

### 4.1.4.1 Oxide

Von den oxidischen Bestandteilen des Bodens sind Eisen, Aluminium und Mangan bestimmt worden. Es sind sowohl die oxalat- als auch die dithionitlösliche Fraktion ermittelt worden. Die oxalatlösliche Fraktion beschreibt dabei die leicht verfügbaren Oxide, während in der dithionitlöslichen Fraktion alle in der Probe enthaltenen Oxide erfasst werden. Insbesondere Eisen- und Aluminiumoxid wird eine wichtige Rolle bei der Sorption von Iod im Boden beigemessen. Manganoxide wirken dagegen stark oxidierend und können so eine Freisetzung des Iods bewirken [65]. Die Bindung des Iods an die Oxide wird vom pH-Wert beeinflusst [66]. Insgesamt ist der Zusammenhang zwischen Iod- und Aluminiumgehalt besser korreliert [67]. In Sorptionsversuchen mit  $^{129}\text{I}$  ist außerdem festgestellt worden, dass das Iodid im Boden durch die oxidischen Bestandteile zu organischen Verbindungen umgewandelt werden kann [68].

### 4.1.4.2 Organische Bestandteile

Der Anteil an organischer Substanz im Boden wird über den Kohlenstoffgehalt bestimmt. Es ist sowohl der Gehalt an organisch gebundenem Kohlenstoff ( $C_{\text{org}}$ ) als auch an mineralischem Kohlenstoff (Carbonat-Kohlenstoff) ermittelt worden. Aus dem Anteil des organischen Kohlenstoffs lässt sich auf die Menge der organischen Substanz im Boden schließen. Auch die organische Substanz ist relevant für die Akkumulation von Iod im Boden, wobei ebenfalls der pH-Wert eine Rolle spielt [65, 66]. Im sauren pH-Bereich können dabei die basischen Gruppen (z.B. Aminogruppen) an den Huminstoffen protoniert werden und erhalten dadurch eine positive Ladung an der das Iod sorbiert werden kann [69]. Whitehead hat außerdem in Sorptionsexperimenten mit stabilem Iod ein Absorptionsmaximum bei pH 8,5 - 9 gefunden, was er auf die organische Substanz zurückführt [66]. Ebenso wie durch die oxidischen Bestandteile kann das anorganische Iod direkt durch die organischen Substanzen in organisch-gebundenes Iod umgewandelt werden [68].

### 4.1.4.3 Körnung

Die Körnung charakterisiert die Größenverteilung der Bodenpartikel. Es wird zwischen drei Fraktionen, Ton, Schluff und Sand, unterschieden. Die Anteile dieser Fraktionen werden in den Böden bestimmt, um die Böden besser vergleichen zu können. Auf die Iodsorption hat die Körnung keinen direkten Einfluss. Dies wäre möglich, wenn Iod, was im Boden hauptsächlich

als Iodid vorliegt, an Tonminerale adsorbiert werden würde. Dies ist jedoch in der Regel nicht der Fall, da sie negativ geladen sind und es so eher zu einer Abstoßung kommt.

### 4.1.4.4 pH-Wert

Der pH-Wert des Bodens beeinflusst die in ihm ablaufenden redoxchemischen Prozesse, da durch ihn das Redox-Potential beeinflusst wird (siehe auch das Eh-pH Diagramm in Abbildung 3). Auch die Bindung des Iods an bestimmte Bodenbestandteile wird durch den pH-Wert beeinflusst [66]. Das liegt daran, dass zum einen die positiven Ladungen der Oxide variabel sind (Ladungsnulldpunkt zwischen pH 8,5 - 9,5) und zum anderen die Huminstoffe ebenfalls viele variable Ladungen besitzen (saure und basische Gruppen) [69]. Es stehen also je nach pH-Wert unterschiedliche Arten bzw. Mengen an Sorptionsplätzen für das Iod zur Verfügung. In einer Studie von Whitehead wurde die Sorption von stabilem Iod in Böden untersucht. Er hat festgestellt, dass organische Bestandteile in einem großen pH-Bereich Iod absorbieren. Eisen- und Aluminiumoxide absorbieren ebenfalls Iod, jedoch nur bei einem pH-Wert  $< 7$  [70]. Dabei ist die Korrelation zum Eisen in besonders sauren Böden am besten, bei Aluminium, aufgrund seiner Löslichkeit, erst ab einem pH von fünf [67, 70].

### 4.1.4.5 Lagerungsdichte

Um später die Depositionsdichten des Iods berechnen zu können, muss die Lagerungsdichte der Böden ermittelt werden. Dafür sind bei der Probennahme Stechzylinder entnommen worden. Dabei handelt es sich um Metallzylinder mit bekanntem Volumen, wie in Abbildung 23 gezeigt. Über die Bestimmung der Trockenmasse des enthaltenen Bodens sowie ggf. enthaltener Fehlstellen, wie z.B. Steine, wird die Dichte des Bodens erhalten.



Abbildung 23: Stechzylinder zur Bestimmung der Lagerungsdichte

## 4.2 Messmethoden

Im folgenden Abschnitt wird die Durchführung der Messungen beschrieben. Nachdem der allgemeine Aufbau der Messgeräte bereits in Abschnitt 3 erläutert worden ist, werden in diesem Kapitel die angewendeten Methoden beschrieben. Dabei werden z.B. die eingesetzten Verdünnungen für die ICP-MS Messung genannt oder Probenhalter für die AMS erläutert.

### 4.2.1 ICP-MS

Die ICP-MS-Messungen sind mit einem Thermo X7 (Abbildung 24) der Firma Thermo Fisher Scientific am Institut für Anorganische Chemie der Leibniz Universität Hannover in der Arbeitsgruppe Analytische Chemie durchgeführt worden. Es handelt sich dabei, wie in Abschnitt 3.1 beschrieben, um ein Quadrupol ICP-MS. Zur Quantifizierung der Messungen ist eine Iodid-Standard-Lösung verwendet worden, aus der

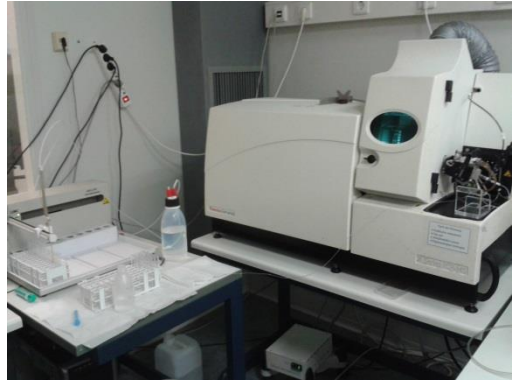


Abbildung 24: ICP-MS mit Autosampler

eine Kalibrationsreihe zwischen 0,2 und 7,5 ppb erstellt worden ist. Um die Matrix der Standards anzupassen und die Lösungen zu stabilisieren ist zusätzlich TMAH zugegeben worden, sodass die Konzentration 10 mmol/L betrug. Die Proben sind vor der Messung so mit Reinstwasser verdünnt worden, dass sie im Kalibrationsbereich lagen. Da es sich jedoch um Umweltproben handelt, die nicht immer die erwarteten Werte liefern, mussten die Messungen mancher Proben wiederholt werden, da ihre gemessene Konzentration über- oder unterhalb der Kalibration lagen. Die für die meisten Proben verwendeten Verdünnungen sind in Tabelle 4 aufgeführt.

Tabelle 4: Empirische Verdünnungsfaktoren der ICP-MS Messung

Probenart	Verdünnungsfaktor
Wasser	1 : 2
Filter PTB	1 : 10
Filter Potsdam	1 : 5
Filter Offenbach	1 : 4
Filter Freiburg	1 : 10
Boden	1 : 200 - 1 : 1000

Auch zu den Proben ist bei der Verdünnung TMAH gegeben worden, damit die Konzentration ebenfalls bei 10 mmol/l lag. Es sind immer mindestens 4 ml Probe für die Messung vorbereitet worden, wenn möglich 10 ml. Die eingesetzte Probemenge ist so gewählt worden, dass noch genug Probenlösung für eine Wiederholung, gegebenenfalls mit anderer Verdünnung, vorhanden gewesen ist.

Bei der Messung ist zunächst eine zweiprozentige Salpetersäure ( $\text{HNO}_3$ ) zur Spülung des Geräts, danach eine TMAH-Lösung (10 mmol/l) als Blindwert und anschließend die Probe

bzw. Standardlösung analysiert worden. Dieser Zyklus ist für jede Probe wiederholt worden. Während der Messung ist jede Probe sechsmal gemessen worden. Neben dem  $^{127}\text{I}$ -Isotop sind  $^{129}\text{Xe}$  und  $^{132}\text{Xe}$  als interne Standards bei jeder Messung registriert worden. Für die Auswertung ist dann das Verhältnis von  $^{127}\text{I}$  zu  $^{129}\text{Xe}$  verwendet worden. Um einen möglichen Drift während der Messung zu korrigieren ist außerdem nach jeweils fünf Iodproben der 2 ppb Standard aus der Kalibration gemessen worden. Die Entwicklung dieses Messverfahrens ist in früheren Arbeiten zu diesem Thema nachzulesen [3, 4, 7]. Im Laufe der Messungen in diesem Projekt ist die manuelle Probenbereitstellung auf die Nutzung eines Autosamplers umgestellt worden. Dabei sind mindestens 4 ml Lösung in ein Polystyrolröhrchen gefüllt und in einen Ständer in den Autosampler gestellt worden. Eine zusätzliche Änderung hat sich durch die Bauweise des Autosamplers ergeben. Die Nadel, die die Proben ansaugt, ist nach jeder Messung automatisch mit Wasser gespült worden, sodass sich ein zusätzlicher Spülschritt ergeben hat. Die bisher zur Spülung bzw. Blindwertmessung eingesetzten Lösungen sind in größere Probengefäße gefüllt und ebenfalls im Autosampler bereitgestellt worden. Sie sind weiterhin wie die Proben gemessen worden. Die Änderung der Probenbereitstellung hat keinen Einfluss auf die Messergebnisse gehabt. Die verwendeten Messparameter wie Pumpgeschwindigkeit, Ansaug- und Spülzeit usw. sind im Anhang 7.4 (Tabelle 22) zu finden. Gemäß DIN 32645 ist eine Nachweisgrenze anhand der Kalibriergeradenmethode von 0,1 ppb berechnet worden [71]. Die Berechnungsweise ist im Anhang (Kapitel 7.1) beschrieben.

Wie bereits erwähnt, hat sich durch die Änderung in der Aerosolfilteraufarbeitung eine höhere Matrixbelastung der ICP-MS Proben ergeben. Als Folge ist eine Änderung im  $^{129}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$  Isotopenverhältnis festgestellt worden. Die Ursache dafür lässt sich in der hohen Bariumkonzentration finden. Barium besitzt das Isotop  $^{132}\text{Ba}$  (0,1 % relative Häufigkeit), welches die Messung des  $^{132}\text{Xe}$  stört, wenn in der Lösung größere Mengen an Barium enthalten sind. Es ist deshalb bei einigen Proben zusätzlich das Hauptisotop des Bariums ( $^{138}\text{Ba}$ ) gemessen und mit diesem der Wert des  $^{132}\text{Xe}$  korrigiert worden. Die Ergebnisse sind in Tabelle 5 dargestellt. Es zeigte sich, dass sich die  $^{132}\text{Xe}$ -Counts für verhältnismäßig niedrige Bariumgehalte ( $^{138}\text{Ba}$ -Counts um 4 Mio.) gut korrigieren lassen. Nach Abzug der berechneten  $^{132}\text{Ba}$ -Counts ergibt sich das erwartete  $^{129}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$  Isotopenverhältnis von  $\sim 0,98$ . Bei noch höheren Concentrationen für  $^{138}\text{Ba}$  ist dies nicht mehr möglich, da sich die Counts außerhalb des linearen Messbereichs befinden, sodass die berechneten Counts für  $^{132}\text{Ba}$  nicht mehr korrekt sind. Es ist jedoch sehr unwahrscheinlich, dass die Werte zusätzlich durch andere Effekte beeinflusst werden.

## Experimenteller Teil

Tabelle 5: Ergebnisse der Korrektur des  $^{132}\text{Xe}$ -Signals mit  $^{138}\text{Ba}$

Ratio $^{129}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$ gemessen	$^{138}\text{Ba}$ Counts	Berechnete $^{132}\text{Ba}$ Counts	$^{132}\text{Xe}$ Counts	Korrigierte $^{132}\text{Xe}$ Counts	$^{129}\text{Xe}$ Counts	Ratio $^{129}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$
0,621021	2.935.983	4.129	11.246	7.117	6.984	0,981364
0,594956	3.447.067	4.848	11.816	6.968	7.030	1,008926
0,540719	4.211.731	5.923	13.141	7.217	7.105	0,984507
0,09352	41.831.975	58.835	62.831	3.996	5.875	1,470601
0,004114	407.112.499	684.036	641.988	-*	2.641	-*

\*Korrektur nicht möglich, da das berechnete  $^{132}\text{Ba}$ -Signal größer ist als die gemessenen  $^{132}\text{Xe}$ -Counts

### 4.2.2 AMS

Die AMS-Messungen sind mit der in Abschnitt 3.2 beschriebenen AMS-Anlage „Tandy“, in Abbildung 26 als Foto zu sehen, am Institut für Teilchenphysik der ETH Höggerberg in Zürich durchgeführt worden. Das getrocknete Silberiodid ist dafür im Verhältnis 1:4 bis 1:6 mit Silberpulver gemischt und anschließend in Probenhalter aus Titan gepresst worden, welche in Abbildung 25 zu sehen sind. Für die Messung sind die Probenhalter in einem Probenrad, ebenfalls aus Titan, platziert worden. Das Probenrad besitzt 40 Positionen, pro Messung können jeweils drei Blanks, drei Standards (jeweils von der ETH) und 34 Proben gemessen werden. Um hinreichend kleine Unsicherheiten zu erhalten, sind die Proben in mehreren Zyklen gemessen worden, bis zu 24 Stunden lang. Als *stripper* ist bei den Iodmessungen Helium verwendet und eine Terminalspeisung von 300 kV angelegt worden. Der anschließend separierte Ladungszustand ist 2+ gewesen. Unter diesen Bedingungen sind Transmissionen von über 40 % erreicht worden [56]. Die gemessenen Isotopenverhältnisse sollten dabei im Bereich von  $10^{-12}$  -  $10^{-11}$  liegen. Bei Isotopenverhältnissen größer  $10^{-10}$  kann es zu einer Kontamination der AMS-Anlage sowie Störungen bei der Messung kommen. Die Erkennungsgrenzen (Tabelle 6) sind nach DIN 25842-10 berechnet worden (siehe Anhang, Abschnitt 7.1) [3, 7, 72]. Die gewünschten Isotopenverhältnisse sind über die eingesetzte Probenmenge und die Zugabe an Woodward Iod, welches eine Verdünnung des Isotopenverhältnisses bewirkt, eingestellt worden.

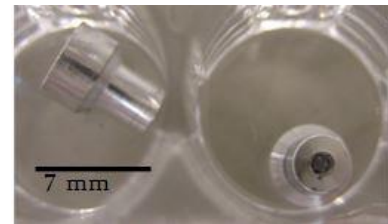


Abbildung 25: Probenhalter AMS

## Experimenteller Teil

Tabelle 6: Erkennungsgrenzen bei der AMS Messung

Probenart	Erkennungsgrenze [ $10^{-15}$ g]
Wasser	0,12
Aerosole	0,89 (Glasfaser); 2,91 (PP)
Boden	95,8

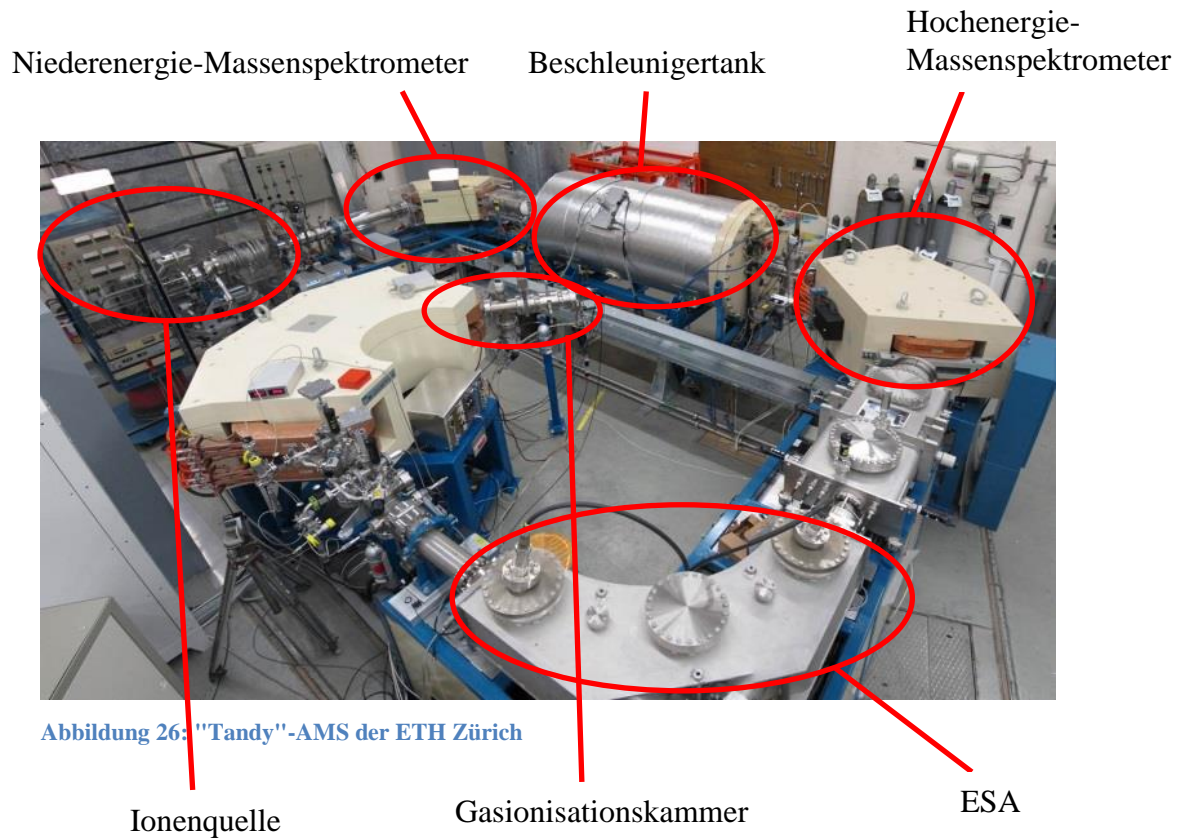


Abbildung 26: "Tandy"-AMS der ETH Zürich

# 5 Ergebnisse und Diskussion

Dieser Abschnitt beschäftigt sich mit den gemessenen Daten, deren Auswertung und Interpretation. Es werden die Ergebnisse der  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Messungen und die daraus berechneten Daten für die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und die der Deposition bzw. des Austrags vorgestellt. Dabei werden zunächst die einzelnen Probenarten separat betrachtet. Die jeweils gefundenen Trends werden diskutiert und mit der Literatur verglichen. Anschließend werden die verschiedenen Kompartimente miteinander in Zusammenhang gebracht.

## 5.1 Niederschlag

Die Niederschlagsproben sind, wie in Kapitel 4.1 beschrieben, über einen Zeitraum von zwei Jahren (März 2011 - Februar 2013) von zehn Radioaktivitätsmessstellen des DWD gesammelt worden, wobei die Regensammler an Tagen ohne Niederschlag mit Reinstwasser gespült worden sind. Dabei wurden entweder 500 ml (Hannover, Schleswig, Potsdam, Görlitz, Essen, Norderney, und Offenbach) oder 1000 ml (Lahr und München) Wasser eingesetzt. Lediglich in Nürnberg sind wechselnde Mengen an Spülwasser verwendet worden (200 - 1000 ml). Von diesem Spülwasser ist ebenfalls ein Aliquot in die Sammelgefäße gegeben worden. Der Niederschlag ist also mit dem Spülwasser verdünnt worden. Andererseits ist die trockene Deposition mit in die Probe gespült worden, welche sonst ebenfalls auf dem Boden deponiert worden wäre. Die Sammlung der Niederschlagsproben ist dabei an die Arbeitsvorschrift des DWD angepasst worden. Es ist keine Korrektur der Daten vorgenommen worden, da zwar der Anteil des Spülwassers hätte korrigiert werden können, nicht jedoch der Einfluss der trockenen Deposition. Die Proben sind monatsweise analysiert worden. Der Übersichtlichkeit halber sind die Standorte in vier Gruppen (Norden, Westen, Süden und Osten; entsprechend der geographischen Lage) unterteilt worden. Zum Norden gehören Norderney, Schleswig und Hannover-Langenhagen. Als Westen werden Essen-Bredeneu und Offenbach betrachtet. Der Süden umfasst Lahr, Nürnberg und München-Oberschleißheim. Im Osten liegen Potsdam und Görlitz.

In Abbildung 27 - Abbildung 30 sind die Ergebnisse der  $^{129}\text{I}$ -Messungen dargestellt. Dabei ist zu beachten, dass die Skala der Diagramme für den Norden und Westen fünfmal größer ( $0 - 35 \cdot 10^{-16} \text{ g/g}$ ) ist, als die der Diagramme für Süden und Osten ( $0 - 7 \cdot 10^{-16} \text{ g/g}$ ).



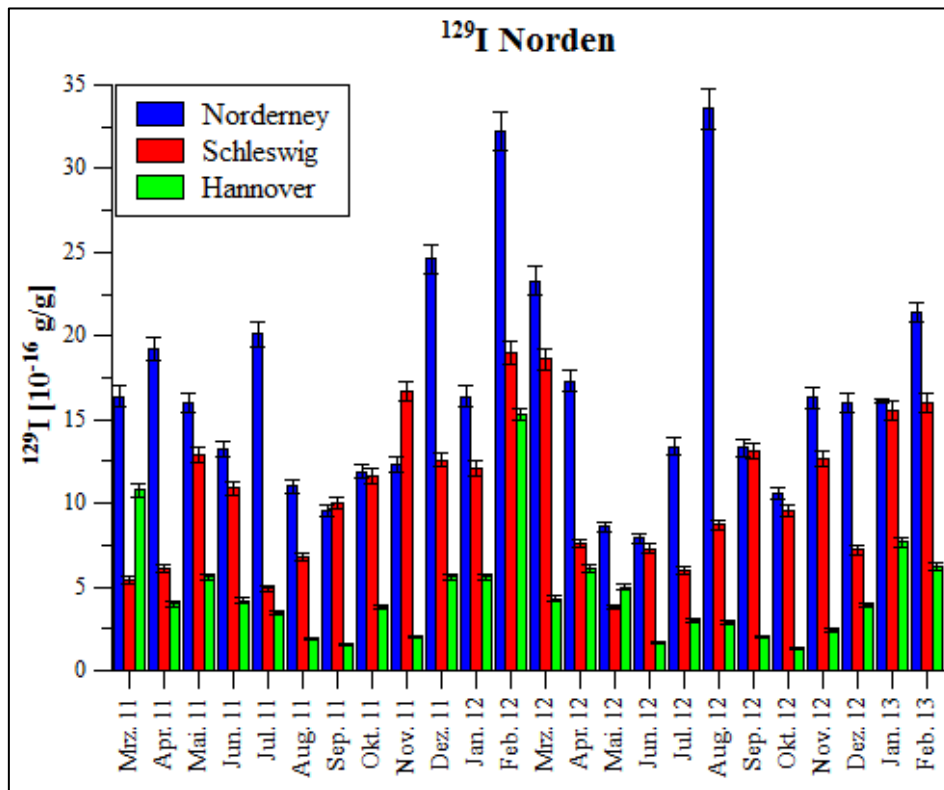


Abbildung 27: <sup>129</sup>I-Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in 10<sup>-16</sup> g/g (Norden)

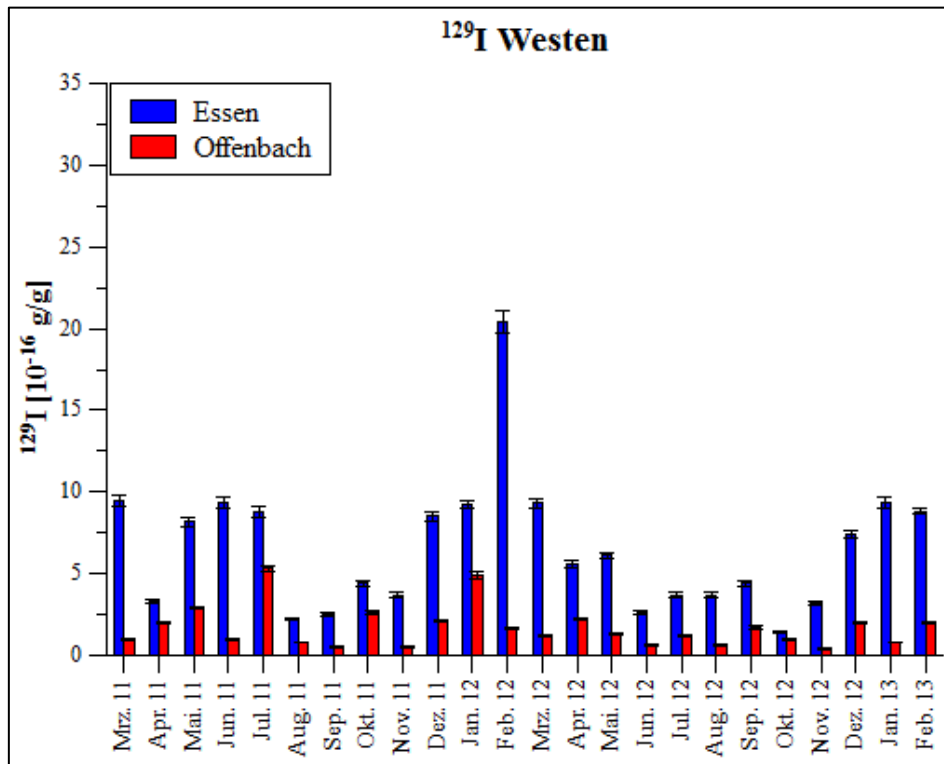


Abbildung 28: <sup>129</sup>I-Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in 10<sup>-16</sup> g/g (Westen)

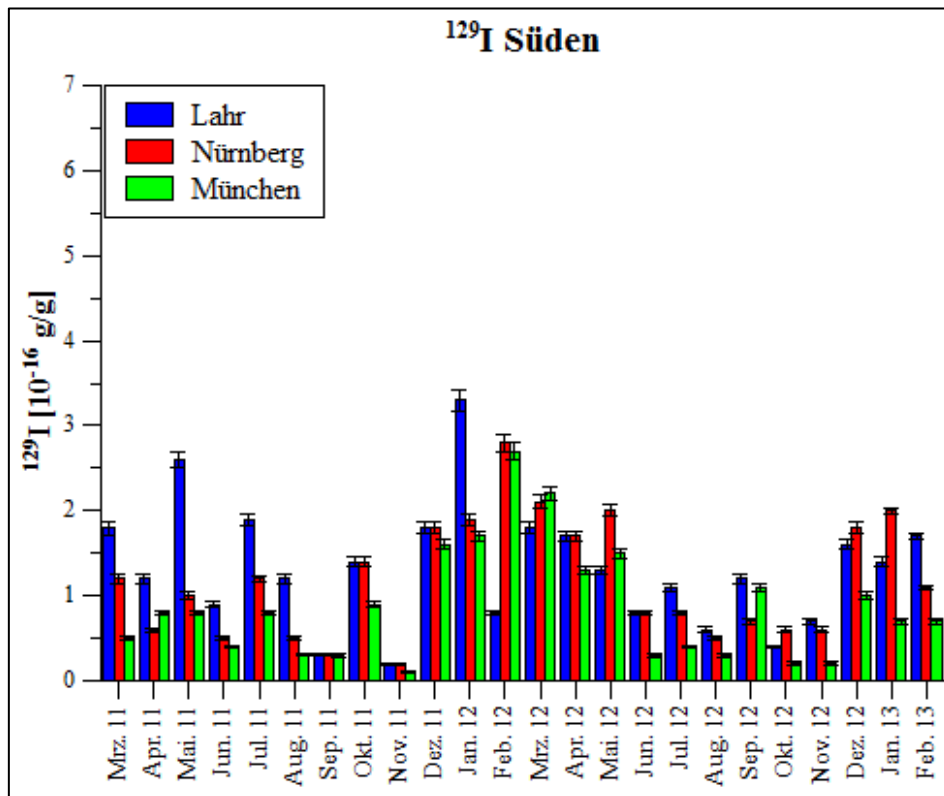


Abbildung 29:  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in  $10^{-16}$  g/g (Süden)

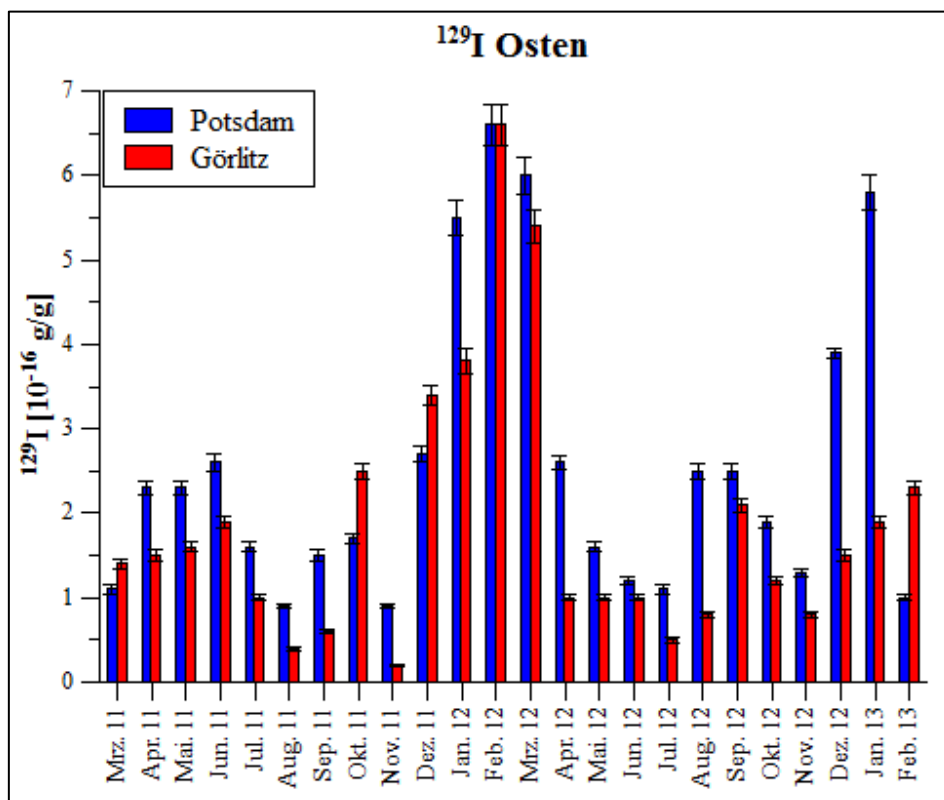


Abbildung 30:  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in  $10^{-16}$  g/g (Osten)

## Ergebnisse und Diskussion

Die Konzentration des  $^{129}\text{I}$  in den Proben reicht von  $0,1 - 33,6 \cdot 10^{-16} \text{ g/g}$ . Die monatlichen Mittelwerte für die jeweiligen Standorte über zwei Jahre liegen bei  $0,9 - 16,7 \cdot 10^{-16} \text{ g/g}$ . In den Proben aus dem Norden Deutschlands finden sich die deutlich höchsten Werte. Da die Nordsee die Hauptquelle des  $^{129}\text{I}$  ist, entsprechen diese Ergebnisse genau den Erwartungen. Bei den Werten aus Westdeutschland sind die Ergebnisse aus Essen deutlich höher als die aus Offenbach. Auch im Vergleich mit den Werten aus Hannover sind die Werte aus Essen meistens höher. Eine mögliche Ursache für dieses Ergebnis könnten die in der Nähe liegenden Industriestandorte sein. Später wird darauf näher eingegangen werden. Die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen in den Niederschlagsproben aus dem Süden und Osten Deutschlands weisen deutlich niedrigere Werte auf. Die Probenahmeorte sind naturgemäß viel weiter von der Nordseeküste entfernt als die im Norden und Westen. Es ist deshalb nachvollziehbar, dass die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte dort viel geringer ausfallen. Besonders niedrige Werte liefern die Stationen in Nürnberg und München, welche auch am weitesten von der Küste entfernt sind. Auffällig ist bei allen Proben die starke Variation der Monatswerte. Diese lassen sich durch die wechselnden Ursprünge der Regenwolken erklären. So enthält der Niederschlag mal mehr, mal weniger  $^{129}\text{I}$ .

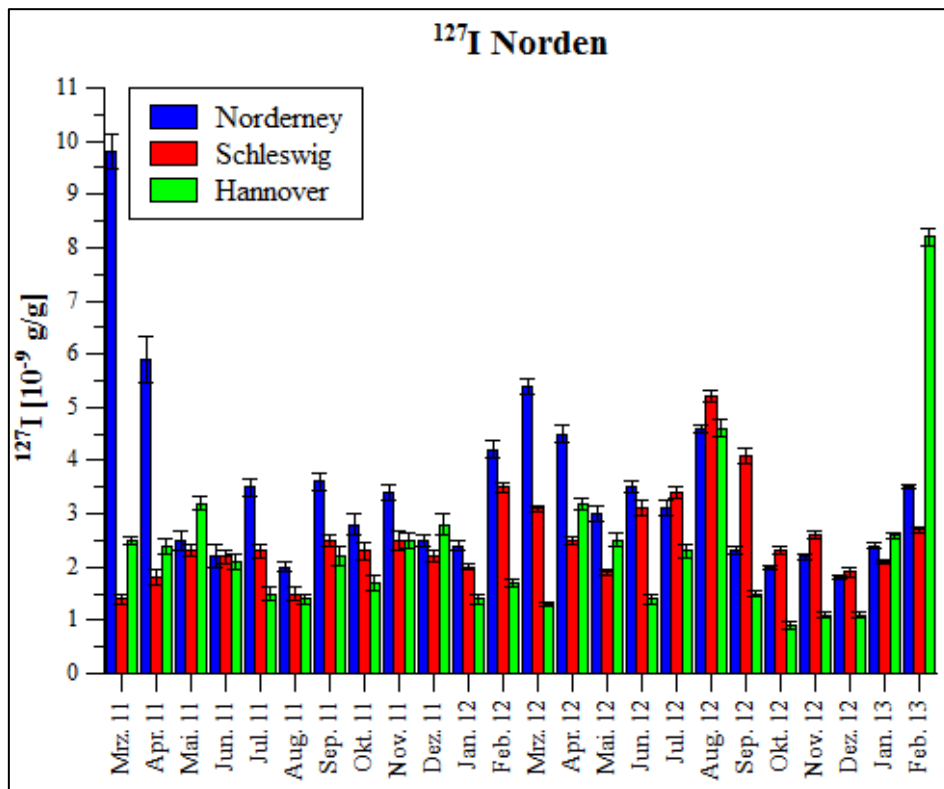


Abbildung 31:  $^{127}\text{I}$ -Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in  $10^{-9} \text{ g/g}$  (Norden)

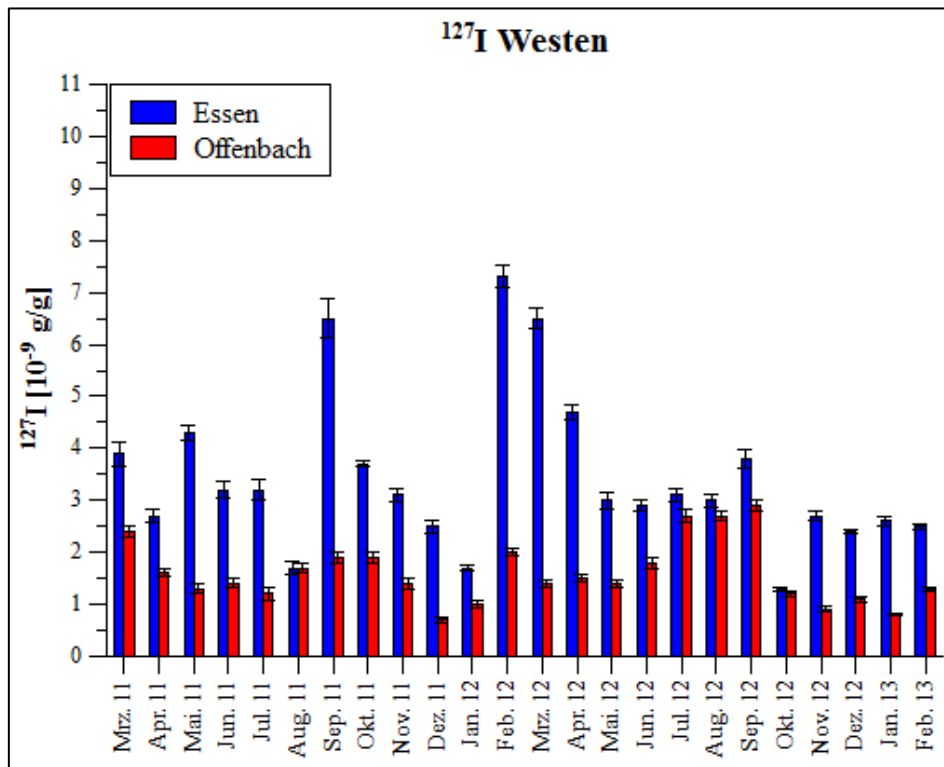


Abbildung 32:  $^{127}\text{I}$ -Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in  $10^{-9}$  g/g (Westen)

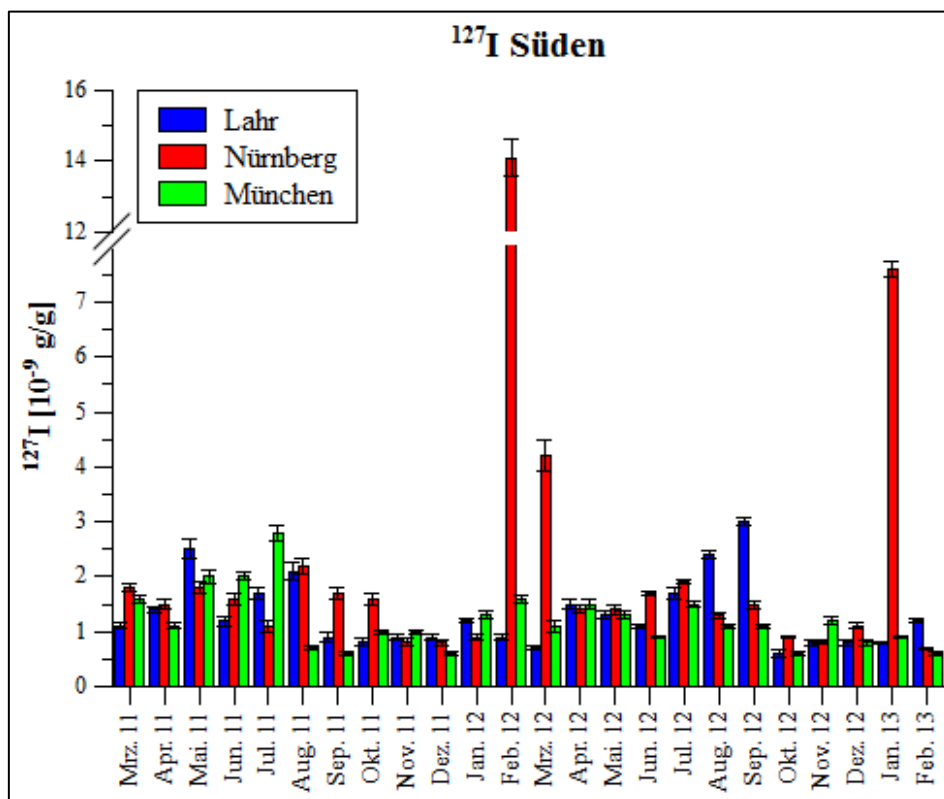


Abbildung 33:  $^{127}\text{I}$ -Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in  $10^{-9}$  g/g (Süden)

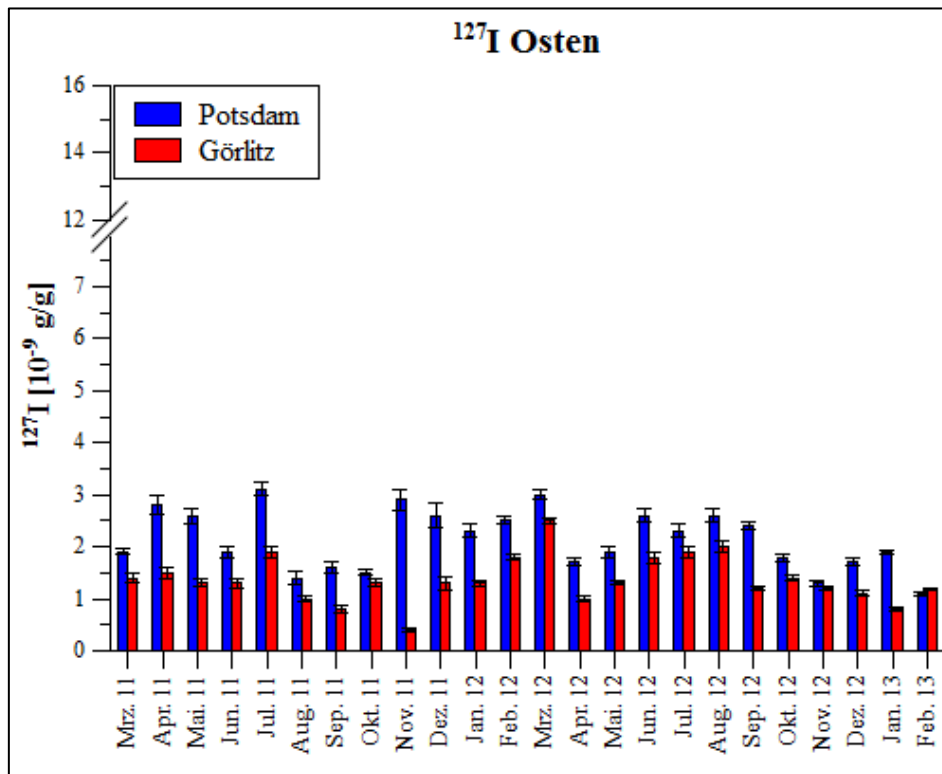


Abbildung 34:  $^{127}\text{I}$ -Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in  $10^{-9}$  g/g (Osten)

Beim  $^{127}\text{I}$  sind die Gehalte deutlich ähnlicher und auch die Schwankungen weniger ausgeprägt. In Abbildung 31 - Abbildung 34 sind die Ergebnisse der  $^{127}\text{I}$ -Messungen gezeigt. Es ist auch hier zu beachten, dass nur die auf einer Seite dargestellten Diagramme dieselbe Skalierung aufweisen (Norden und Westen  $0 - 11 \cdot 10^{-9}$  g/g, Süden und Osten  $0 - 16 \cdot 10^{-9}$  g/g).

Die Werte schwanken für alle Stationen zwischen  $0,6 - 9,8 \cdot 10^{-9}$  g/g (der Wert aus Nürnberg vom Februar 2012 mit  $14,1 \cdot 10^{-9}$  g/g ist ausgeschlossen worden, da er um ca. den Faktor zehn höher ist als die anderen Werte aus Nürnberg) bzw. im monatlichen Mittel zwischen  $1,2 - 3,5 \cdot 10^{-9}$  g/g. Auch beim stabilen Iod sind die Werte im Norden am größten, vor allem auf Norderney. Die Werte in Essen sind ebenfalls wieder deutlich größer als die in Offenbach und Hannover. Auch hier lassen sich die Industriestandorte im Ruhrgebiet als mögliche Ursache anführen. Auffällig sind die vereinzelt auftretenden stark erhöhten Werte in Nürnberg (Februar und März 12, Januar 13). Es handelte sich dabei um kalte, trockene Monate mit langen Frostperioden. Dabei ist also verhältnismäßig viel trockene Deposition auf den Regensammlern abgelagert und in die Proben gespült worden. Dadurch wurde der Iod-gehalt in den Proben insgesamt erhöht. Die relativ hohen Werte in Nürnberg lassen demnach durch einen verhältnismäßig hohen Anteil an trockener Deposition in diesen Monatsproben

## Ergebnisse und Diskussion

erklären. In Potsdam ist im Vergleich zu Görlitz mehr  $^{127}\text{I}$  gemessen worden, was sich durch die Nähe zu einer Großstadt (Berlin) erklären lässt.

In der Literatur wird der Gehalt von stabilem Iod von Whitehead mit  $1,5 - 2,5 \cdot 10^{-9}$  g/g angegeben, für Regionen, die nicht direkt an der Küste liegen [46]. Die in dieser Arbeit gemessenen Mittelwerte liegen zwischen  $1,2 - 2,3 \cdot 10^{-9}$  g/g, wenn die Stationen in Küstennähe und Essen (durch Industrie beeinflusst) nicht mit betrachtet werden. Es ergibt sich also eine gute Übereinstimmung mit den Literaturdaten für stabiles Iod im Niederschlag.

Aus den bestimmten Gehalten für  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  ist das in den Proben vorhandene Isotopenverhältnis berechnet worden. Die Ergebnisse sind in Abbildung 35 - Abbildung 38 dargestellt. Wiederum muss darauf hingewiesen werden, dass die Skala für die Daten aus dem Norden und Westen dreimal größer ( $0 - 1200 \cdot 10^{-9}$ ) ist, als für die Daten aus dem Süden und Osten ( $0 - 400 \cdot 10^{-9}$ ).

Die ermittelten Isotopenverhältnisse liegen zwischen  $16 - 987 \cdot 10^{-9}$ , die monatlichen Mittelwerte im Bereich von  $78 - 527 \cdot 10^{-9}$ . Wie erwartet liefern auch hier die Stationen aus dem Norden die höchsten Werte, es ist deutlich die Nordsee als Quelle für das  $^{129}\text{I}$  zu erkennen. Die Werte aus Essen liegen in diesem Fall deutlich näher an denjenigen aus Offenbach und sind auch kleiner als die Werte aus Hannover.

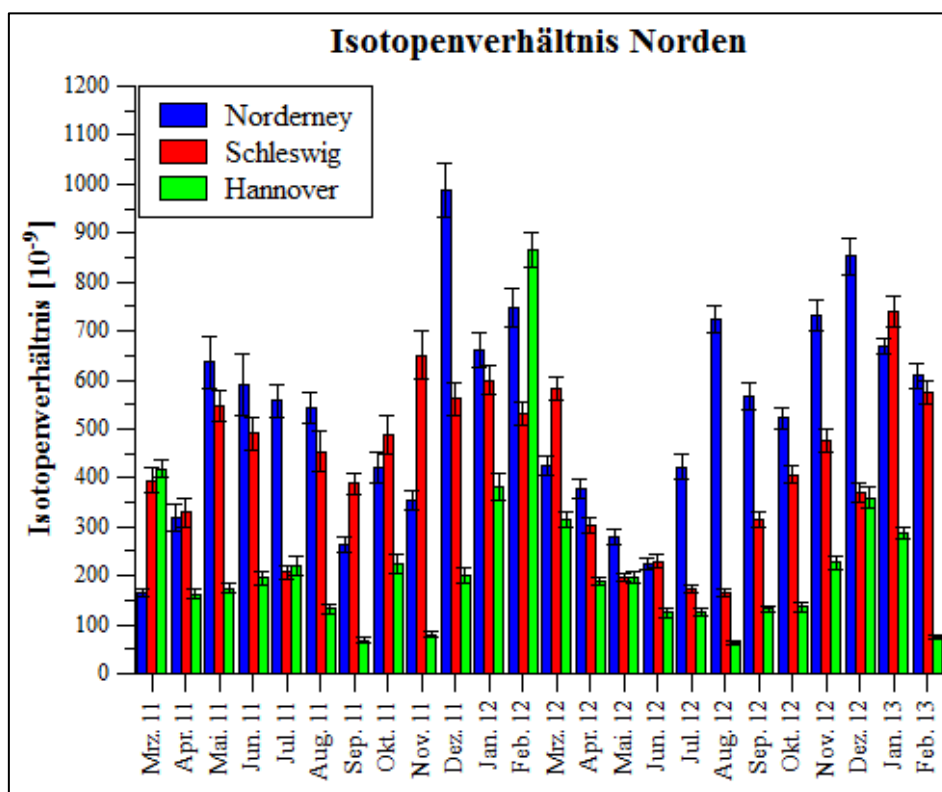


Abbildung 35: Ergebnisse der monatlichen Isotopenverhältnisse im Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in  $10^{-9}$  (Norden)

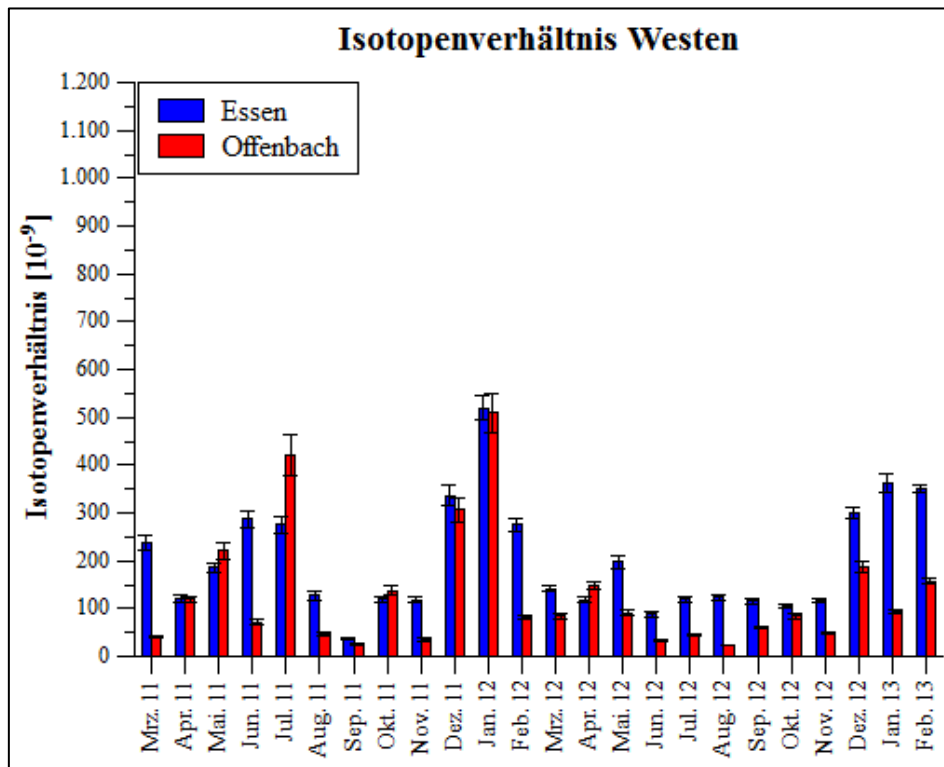


Abbildung 36: Ergebnisse der monatlichen Isotopenverhältnisse im Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in  $10^{-9}$  (Westen)

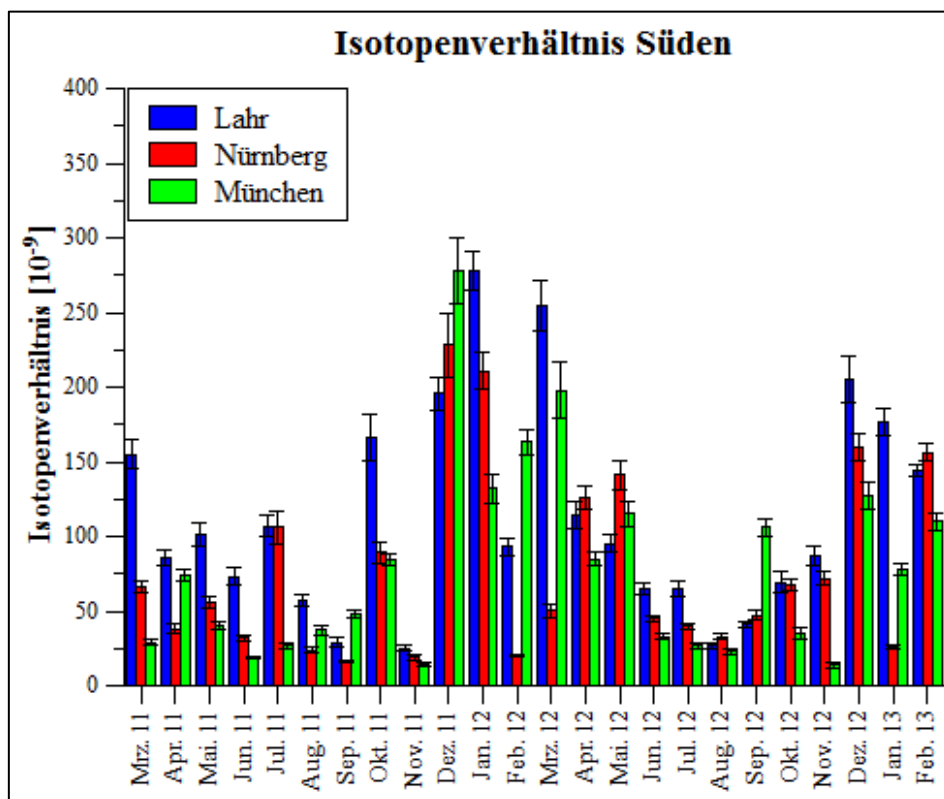


Abbildung 37: Ergebnisse der monatlichen Isotopenverhältnisse im Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in  $10^{-9}$  (Süden)

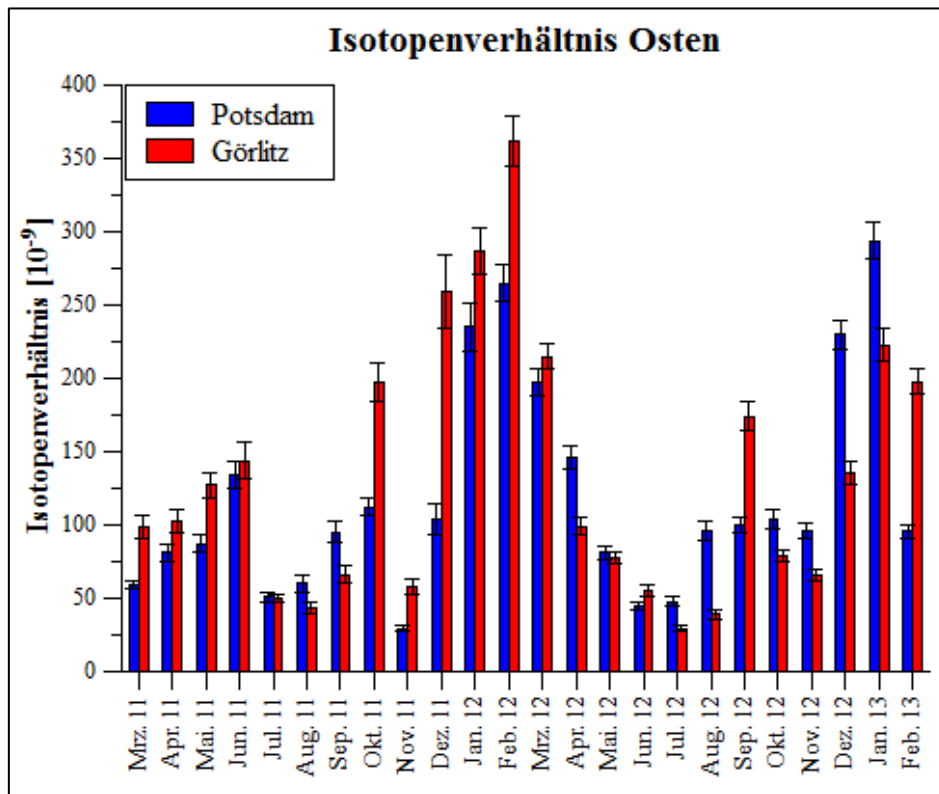


Abbildung 38: Ergebnisse der monatlichen Isotopenverhältnisse im Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in  $10^{-9}$  (Osten)

Ein Vergleich der monatlichen Mittelwerte zeigt, dass die Werte in Hannover ( $223 \cdot 10^{-9}$ ) höher sind als in Essen ( $199 \cdot 10^{-9}$ ) und diese wiederum höher als in Offenbach ( $128 \cdot 10^{-9}$ ). Die Konzentrationen von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Essen sind möglicherweise von lokalen Quellen beeinflusst, was jedoch bei der Bildung des Isotopenverhältnisses wieder relativiert wird. Die Werte im Süden und Osten Deutschlands sind alle relativ ähnlich zu einander.

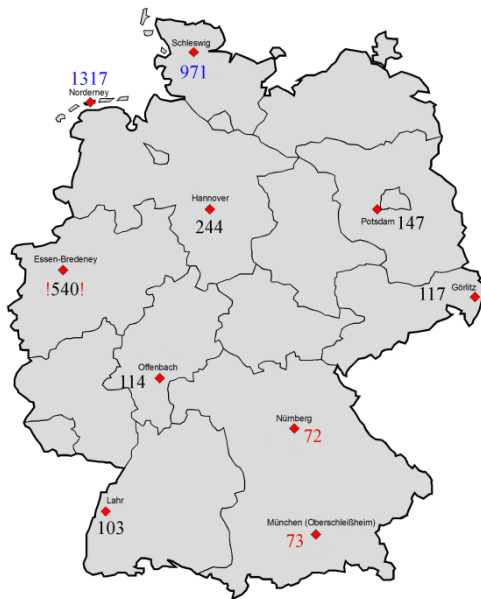
Ein Vergleich mit den in der Literatur gefundenen Daten zeigt, dass sich die in dieser Arbeit ermittelten Isotopenverhältnisse genau mit dem dort angegebenen Bereich von  $10^{-8}$  -  $10^{-7}$  decken. Es hat sich ebenso bestätigt, dass die Werte in der Nähe der Nordsee höher sind als im Binnenland [3–7, 10, 21, 23, 26–28].

Zusammen mit den ermittelten Niederschlagsmengen (in  $\text{l/m}^2$ ) sind Depositionsraten berechnet worden. Die Jahresmittelwerte der Deposition sind in Abbildung 39 ( $^{129}\text{I}$  in  $10^{-12}$  g/g) und Abbildung 40 ( $^{127}\text{I}$  in  $10^{-6}$  g/g) dargestellt.

In den Depositionsraten des  $^{129}\text{I}$  zeigt sich deutlich ein Gefälle von Norden nach Süden und von Westen nach Osten. Dies bestätigt die bereits bei den  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen gemachten Beobachtungen. Wiederum fällt auf, dass der Wert in Essen ( $540 \cdot 10^{-12}$  g/m<sup>2</sup>) deutlich höher ist, als die Werte in Hannover ( $244 \cdot 10^{-12}$  g/m<sup>2</sup>) und Offenbach ( $114 \cdot 10^{-12}$  g/m<sup>2</sup>). Die Werte ganz im Süden und Osten sind um eine Größenordnung niedriger als direkt an der Küste.

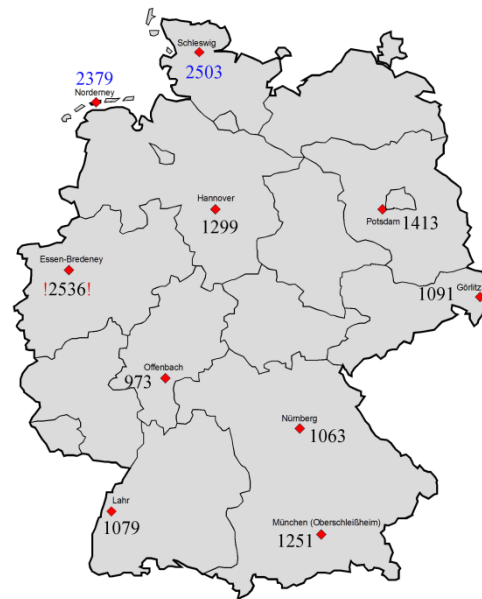


**$^{129}\text{I}$ -Depositionsraten**



**Abbildung 39: Mittlere jährliche Deposition von  $^{129}\text{I}$  durch Niederschläge in  $10^{-12} \text{ g/m}^2$  (blau = hohe Werte, rot = niedrige Werte, ! = auffällige Werte)**

**$^{127}\text{I}$ -Depositionsraten**



**Abbildung 40: Mittlere jährliche Deposition von  $^{127}\text{I}$  durch Niederschläge in  $10^{-6} \text{ g/m}^2$  (blau = hohe Werte, ! = auffällige Werte)**

Beim  $^{127}\text{I}$  lässt sich ein deutlicher Einfluss des *sea-sprays* für die beiden Stationen in Küstennähe beobachten. Norderney ( $2379 \cdot 10^{-6} \text{ g/m}^2$ ) und Schleswig ( $2503 \cdot 10^{-6} \text{ g/m}^2$ ) zeigen etwa doppelt so hohe  $^{127}\text{I}$ -Depositionsraten wie die anderen Stationen ( $973 - 1.413 \cdot 10^{-6} \text{ g/m}^2$ ). Auch hier weicht Essen ( $2.536 \cdot 10^{-6} \text{ g/m}^2$ ) wiederum von den anderen Stationen ab und zeigt sogar die höchste berechnete Depositionsraten für alle Stationen.

Klipsch hat in seiner Dissertation Werte für die jährlichen  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Depositionen durch Niederschläge (1997 - 2004) angegeben [5]. Er unterscheidet dabei zwischen küstennahen und küstenfernen Regionen in Niedersachsen. Um die Deposition zu berechnen hat er die bis dahin verfügbaren Werte aus den langjährigen Messreihen gemittelt und einen minimalen und maximalen Wert für die Niederschlagshöhe aus der Literatur entnommen. Für das  $^{129}\text{I}$  liegen die hier ermittelten Werte innerhalb (Norderney) bzw. knapp unterhalb (Schleswig) des von ihm angegebenen Bereichs. Die küstenfernen Bereiche liegen alle unterhalb des von Klipsch angegebenen Bereichs. Auch Daraoui gibt in seiner Dissertation Depositionsraten anhand der fortgeführten Zeitreihen bis 2009 an [3]. Er gibt vergleichbare Werte mit denen von Klipsch an. Die  $^{129}\text{I}$ -Deposition durch den Niederschlag scheint sich in den letzten 15 Jahren nicht signifikant verändert zu haben. Die  $^{127}\text{I}$ -Depositionsraten liegen alle in den jeweils von Klipsch berechneten Bereichen. Da diese nicht von anthropogenen Einflüssen betroffen sind

## Ergebnisse und Diskussion

sollten sich hier keine Veränderungen ergeben. Lediglich Essen fällt aus den bereits genannten Gründen heraus.

Werden die ermittelten Depositionsraten gegen die Entfernung der Station zur Nordseeküste aufgetragen, ergeben sich die in Abbildung 41 und Abbildung 42 gezeigten Zusammenhänge:

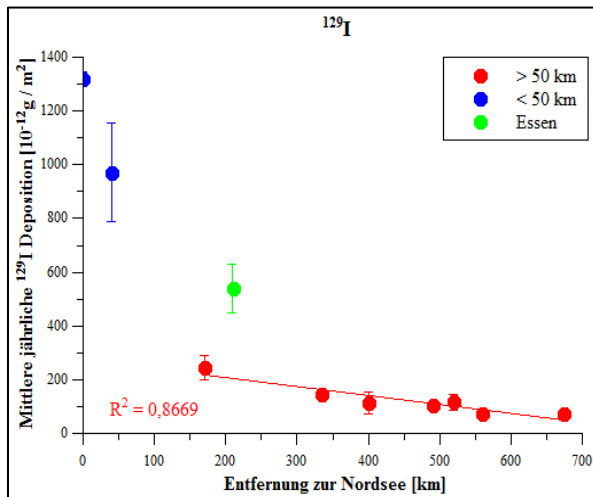


Abbildung 41:  $^{129}\text{I}$ -Depositionsraten im Niederschlag in  $10^{-12} \text{ g/m}^2$  in Abhängigkeit von der Entfernung zur Nordsee in km

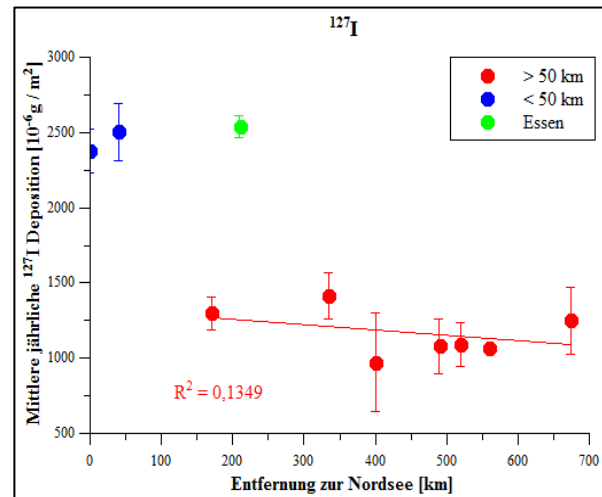


Abbildung 42:  $^{127}\text{I}$ -Depositionsraten im Niederschlag in  $10^{-6} \text{ g/m}^2$  in Abhängigkeit von der Entfernung zur Nordsee in km

Für die Auftragung ist die kürzeste Entfernung zur Nordseeküste in Kilometern abgeschätzt worden. Die verwendeten Zahlen sind im Anhang 7.4 (Tabelle 12 bzw. Tabelle 16) zu finden. Sowohl beim  $^{129}\text{I}$  als auch beim  $^{127}\text{I}$  lassen sich zwei Gruppen erkennen. Zum einen die Standorte in bis zu 50 km Entfernung von der Nordsee und zum anderen die Standorte die weiter als 50 km von der Nordsee entfernt liegen. Obwohl Essen eigentlich in die zweite Gruppe gehört weichen die dort gefundenen Ergebnisse deutlich von den anderen ab. Es könnte sich dabei um einen Einfluss der nahen Stahlindustrie handeln, bei der große Mengen an Kohle verbrannt werden. Der  $^{127}\text{I}$ -Gehalt in Kohle wird in der Literatur mit  $1 - 15 \cdot 10^{-6} \text{ g/g}$  angegeben [46, 73]. Es können also durchaus größere Mengen an  $^{127}\text{I}$  durch Kohleverbrennung in die Luft gelangen und lokal durch den Niederschlag wieder ausgewaschen, also deponiert, werden. Da das Isotopenverhältnis in Kohle sehr niedrig ist, werden bei der Verbrennung im Vergleich zu  $^{127}\text{I}$  geringe Mengen an  $^{129}\text{I}$  freigesetzt. Dadurch ließe sich erklären warum für Essen die  $^{127}\text{I}$ -Depositionsraten auf dem Niveau von küstennahen Standorten wie Norderney und Schleswig liegt, während die  $^{129}\text{I}$ -Depositionsraten im Vergleich jedoch wesentlich geringer erhöht ist.

Beim  $^{129}\text{I}$  lässt sich für die erste Gruppe ein starker Einfluss des *sea-sprays* erkennen, dieser scheint mit größerer Entfernung abzunehmen, was jedoch anhand von nur zwei Datenpunkten

nicht sicher nachzuweisen ist. Die zweite Gruppe zeigt eindeutig einen linearen Zusammenhang zwischen der Depositionsrate von  $^{129}\text{I}$  und der Entfernung zur Nordseeküste ( $R^2 = 0,8669$ ). Dadurch wird die Theorie unterstützt, dass die Hauptquelle für  $^{129}\text{I}$  die Nordsee ist [21, 22, 27, 28, 74, 75].

Für das  $^{127}\text{I}$  ist keine signifikante Abnahme mit der Entfernung erkennbar, d.h. die  $^{127}\text{I}$ -Deposition ist unabhängig von der Entfernung zur Nordsee. Es scheint verschiedene, lokale Quellen für  $^{127}\text{I}$  im Niederschlag zu geben. In der Nähe der großen Städte (München, Berlin) ist die Deposition gegenüber den anderen Standorten beispielsweise etwas höher. Auch hier können Emissionen aus der Industrie sowie, besonders im Winter, die vielfältige Nutzung fossiler Brennstoffe als Ursache angeführt werden [76].

Es ist außerdem überprüft worden, ob sich ein Zusammenhang zwischen den deponierten Mengen an  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  ergibt (Abbildung 43):

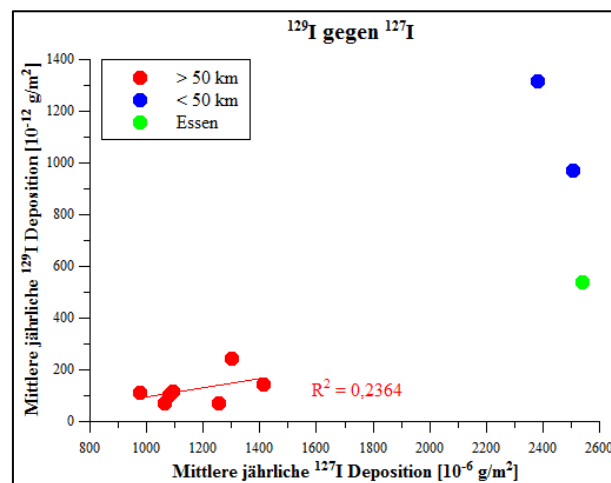


Abbildung 43: Vergleich der mittleren jährlichen Depositionsraten für  $^{129}\text{I}$  in Abhängigkeit von  $^{127}\text{I}$  im Niederschlag

Die graphische Auftragung zeigte jedoch, dass keine Korrelation zwischen den Werten besteht ( $R^2 = 0,2364$ ). Auch daran lässt sich erkennen, dass ein Unterschied zwischen den Quellen von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  im Niederschlag besteht.

## 5.2 Aerosole

Auch die Aerosolproben sind über einen Zeitraum von zwei Jahren von vier Stationen des IMIS Netzwerks sowie der DWD Station in Hannover-Langenhagen zur Verfügung gestellt worden. Ebenso wie die Niederschlagsproben sind sie zu Monatsproben zusammengefasst worden. Die Durchführung der Probenahme ist in Abschnitt 4.1 beschrieben.

## Ergebnisse und Diskussion

Es werden zunächst die Ergebnisse von den drei IMIS Messstationen in Offenbach, Potsdam und Freiburg und die der DWD Station in Hannover miteinander verglichen. Die Ergebnisse der IMIS Messstelle der PTB in Braunschweig ist aus der Betrachtung ausgenommen worden, da hier die Probenahme auf andere Weise vorgenommen worden ist, als bei den übrigen Stationen. Es ist überprüft worden, wie die unterschiedlichen Probenahmesysteme sich auf die Ergebnisse auswirken. Darauf wird im zweiten Abschnitt eingegangen.

### 5.2.1 Vergleich der vier Messstationen

In Abbildung 44 sind die Ergebnisse der  $^{129}\text{I}$ -Messungen aus Hannover (DWD; Ersatz für Braunschweig (IMIS, North)), Offenbach (IMIS, Central), Potsdam (IMIS, East) und Freiburg (IMIS, South) dargestellt:

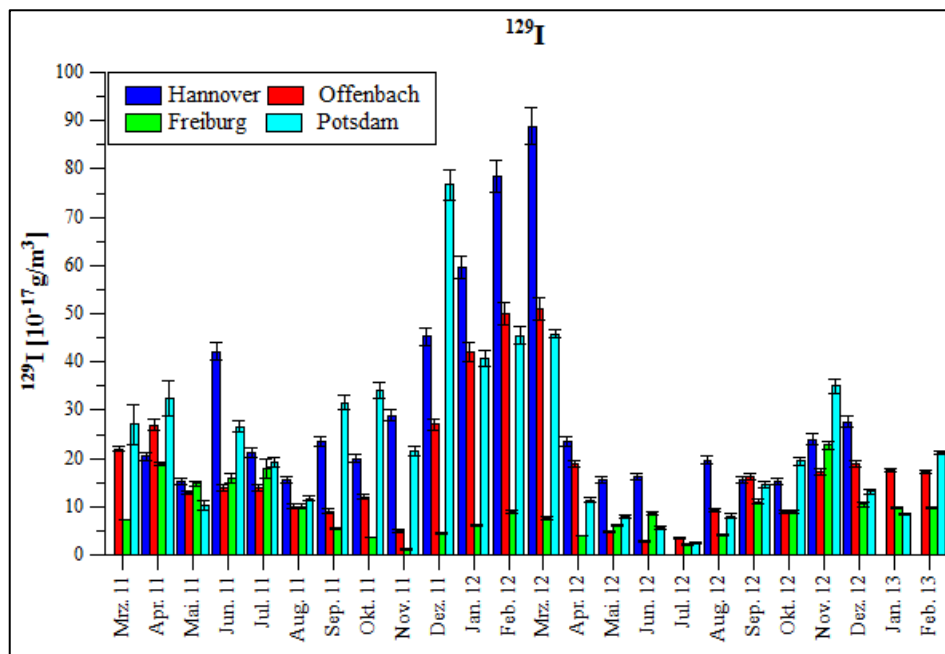


Abbildung 44: Ergebnisse der monatlichen  $^{129}\text{I}$ -Messungen der Aerosolfilter von März 2011 bis Februar 2013 in  $10^{-17} \text{g/m}^3$

Die Ergebnisse der Proben aus Hannover stammen aus der Bachelorarbeit von Moor [63]. Die Probe vom Juli 2012 ist ausgeschlossen worden, da dort ein extrem hoher  $^{127}\text{I}$ -Wert ( $261,9 \cdot 10^{-9} \text{g/m}^3$ ) gefunden worden ist. Er liegt ca. um den Faktor 100 höher als die anderen  $^{127}\text{I}$ -Werte und wird deshalb als Ausreißer behandelt. Der Grund für diese Abweichung konnte nicht ermittelt werden.

Die gemessenen  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen reichen von  $1,2 - 88,9 \cdot 10^{-17} \text{g/m}^3$ . Ähnlich wie beim Niederschlag sind auch bei den Aerosolen starke Schwankungen der Werte zu beobachten.

## Ergebnisse und Diskussion

Dabei ergibt sich der höchste Mittelwert in Hannover ( $30,8 \cdot 10^{-17} \text{ g/m}^3$ ) gefolgt von Potsdam ( $23,8 \cdot 10^{-17} \text{ g/m}^3$ ) und Offenbach ( $17,9 \cdot 10^{-17} \text{ g/m}^3$ ). Der niedrigste Mittelwert findet sich im Süden auf dem Schauinsland (1284 m ü. NHN) in der Nähe von Freiburg mit  $9,2 \cdot 10^{-17} \text{ g/m}^3$ . Die Erwartung, dass sich die höchsten Werte im Norden finden, wird demnach auch hier bestätigt. In Potsdam treten verglichen mit Offenbach höhere Werte auf. Eine Erklärung kann die Nähe von Potsdam zur Großstadt Berlin sein. Aufgrund der vielfältigen Nutzung fossiler Brennstoffe ist auch eine höhere Iodkonzentration in der Atmosphäre zu erwarten. Wird die Entfernung zur Nordseeküste betrachtet, fällt auf, dass Potsdam außerdem ca. 70 km näher an der Küste liegt. Offenbach repräsentiert wie auch die Bezeichnung der IMIS Messstelle (Central) besagt eher die Mitte Deutschlands als den Westen. Deshalb sind auch niedrigere  $^{129}\text{I}$ -Werte zu erwarten als in Potsdam. Ein Blick auf die Depositionsraten der Niederschläge bestätigt ebenfalls, dass auch in diesem Fall die Deposition von  $^{129}\text{I}$  in Potsdam höher ist als in Offenbach.

Wershofen hat im März 1986 in Bonn ca.  $60 \cdot 10^{-17} \text{ g/m}^3$  partikel-gebundenes  $^{129}\text{I}$  gemessen [33]. Die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration liegt damit innerhalb des Schwankungsbereichs der in dieser Arbeit ermittelten Werte. Daraoui gibt in seiner Dissertation  $15 \cdot 10^{-17} \text{ g/m}^3$  als  $^{129}\text{I}$ -Konzentration für Aerosolfilter aus Niedersachsen (2002 - 2009) an. Die Literaturdaten stimmen gut mit den in dieser Arbeit gemessenen Daten überein.

Die gemessenen Daten für  $^{127}\text{I}$  in den Aerosolen sind in Abbildung 45 graphisch aufgetragen:

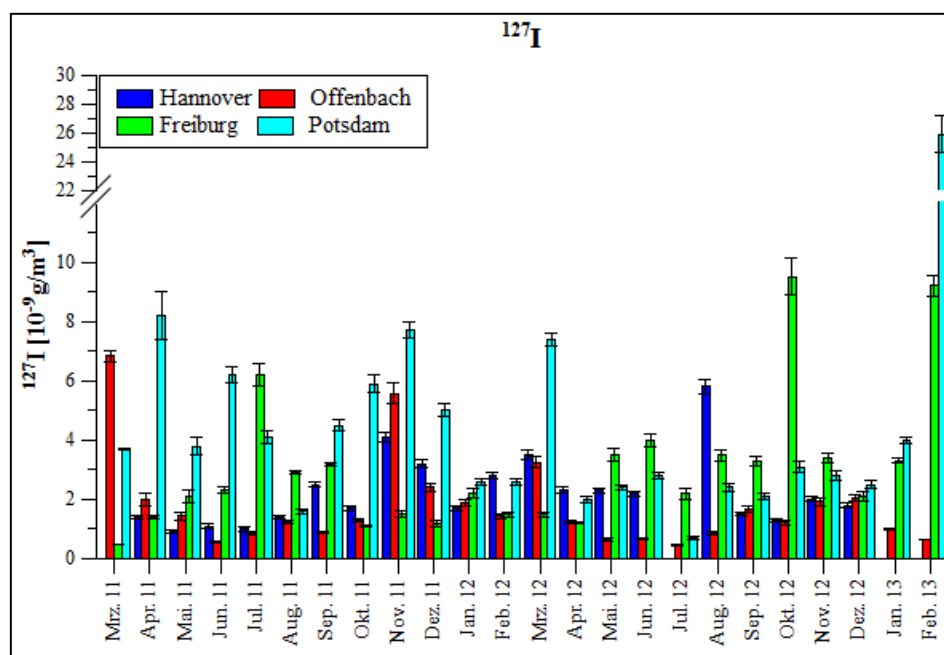


Abbildung 45: Ergebnisse der monatlichen  $^{127}\text{I}$ -Messungen der Aerosolfilter von März 2011 bis Februar 2013 in  $10^{-9} \text{ g/m}^3$

Die gefundenen Werte reichen von  $0,5 - 9,5 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ . Der Wert vom Februar 2013 aus Potsdam ( $25,9 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ ) ist als Ausreißer ausgeschlossen worden. Sie schwanken also erwartungsgemäß deutlich weniger als die  $^{129}\text{I}$ -Werte. Auch die Mittelwerte ergeben für das  $^{127}\text{I}$  ein anderes Bild. Hierbei findet sich der höchste Wert mit  $3,8 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$  in Potsdam und der niedrigste Wert mit  $1,8 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$  in Offenbach. Ein ähnlicher Wert lässt sich für Hannover ( $2,2 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ ) berechnen. Freiburg ( $3,0 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ ) liegt dagegen wiederum höher. Die Gehalte an stabilem Iod in den Aerosolen sind anscheinend eher lokal beeinflusst, z.B. durch die Nutzung fossiler Brennstoffe in der Industrie und im privaten Umfeld. Es deutet sich kein Trend in Abhängigkeit von der Entfernung zur Nordsee an.

Literaturdaten zum Gehalt an stabilem Iod in Aerosolen finden sich bei Santos ( $1 - 7 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ , in Sevilla (Spanien)) und Englund ( $0,2 - 10 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ , in Schweden) [29, 30]. Ihre Werte decken genau denselben Bereich ab, wie die in diesem Projekt gemessenen. Bei Wershofen findet sich ein Wert für 1986 aus Bonn. Er gibt die  $^{127}\text{I}$ -Konzentration im Aerosol mit  $2 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$  an. In der Dissertation von Daraoui finden sich  $^{127}\text{I}$ -Gehalte in Aerosolfiltern aus Niedersachsen von 2002 - 2009 [3]. Sie liegen zwischen  $0,7 - 0,8 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ . Sie sind damit um den Faktor zwei niedriger als die in dieser Arbeit gefundenen Werte. Insgesamt stimmen die gefundenen Ergebnisse sehr gut mit denen aus der Literatur überein.

Auch bei den Aerosolen sind die Isotopenverhältnisse berechnet worden. Die Ergebnisse zeigt Abbildung 46. Für die Isotopenverhältnisse werden Werte zwischen  $8,0 - 377,3 \cdot 10^{-9}$  ermittelt. Erwartungsgemäß ergibt sich der höchste Mittelwert für die Proben aus Hannover ( $152,8 \cdot 10^{-9}$ ). Hier zeigt sich außerdem die ursprünglich erwartete Tendenz, dass die Werte von Norden nach Süden und von Westen nach Osten abnehmen. In Offenbach findet sich ein mittleres Isotopenverhältnis von  $114,3 \cdot 10^{-9}$ , in Potsdam dagegen  $63,3 \cdot 10^{-9}$  und in Freiburg das niedrigste mittlere Isotopenverhältnis mit  $42,7 \cdot 10^{-9}$ .

Gemäß den in der Literatur gefundenen Daten sollten die Isotopenverhältnisse in Aerosolen zwischen  $10^{-9} - 10^{-7}$  liegen. Das entspricht den gefundenen Werten. Die höchsten Isotopenverhältnisse werden, wie in der Literatur beschrieben, am Standort der am nächsten zur Küste liegt gefunden und sind im Bereich von  $10^{-8} - 10^{-7}$ . Weiter im Inland liegen die Isotopenverhältnisse wie erwartet zwischen  $10^{-9} - 10^{-8}$ . Die ermittelten Daten für die Aerosole sind demnach in guter Übereinstimmung mit der Literatur [3, 4, 29–33].

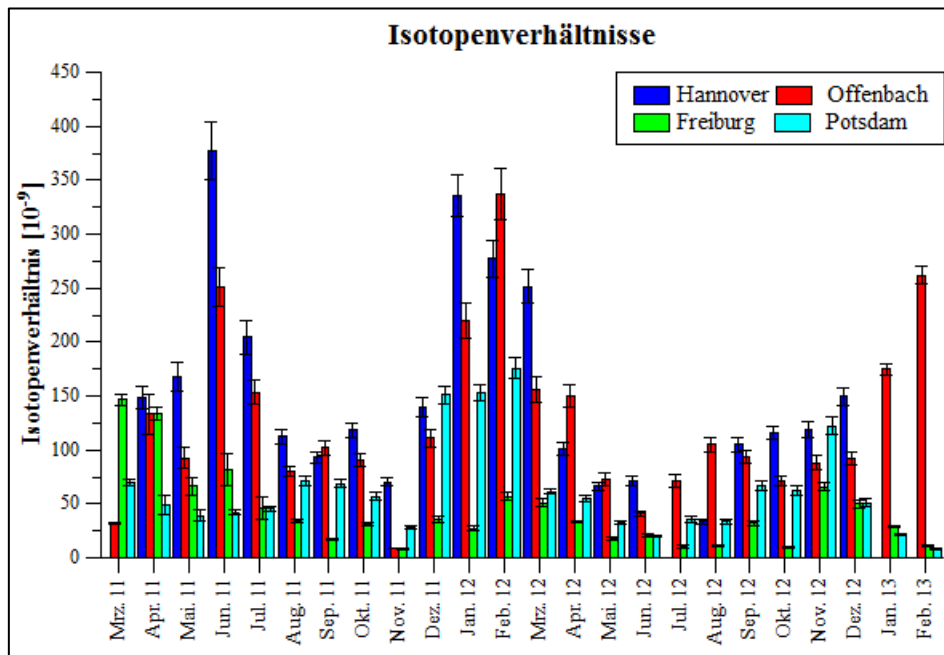


Abbildung 46: Ergebnisse der monatlichen Isotopenverhältnisse der Aerosolfilter von März 2011 bis Februar 2013 in  $10^{-9}$

Um wie bei den Niederschlägen Depositionsraten berechnen zu können, muss bekannt sein, wie viel Gramm Aerosol sich in einem bestimmten Zeitraum auf einem Quadratmeter Boden absetzt. Dieser Wert wird von den Messstationen jedoch nicht bestimmt.

In der Literatur findet sich jedoch eine Formel (Gl. 6), die es erlaubt, die jährliche Deposition abzuschätzen [29]:

$$F_d(t) = C(t) \cdot v_d \cdot tr \quad \text{Gl. 6}$$

Dabei steht  $F_d(t)$  für die trockene Deposition in einem bestimmten Zeitraum  $t$ ,  $C(t)$  für die mittlere Konzentration im Zeitraum  $t$ ,  $v_d$  für die Depositionsgeschwindigkeit sowie  $tr$  für den Umrechnungsfaktor von  $\text{m}^{-2}\text{s}^{-1}$  zu  $\text{m}^{-2}\text{y}^{-1}$ . Englund gibt an, dass die Depositionsgeschwindigkeit für Iod zwischen 0,001 - 0,02 m/s liegt. Mit Hilfe der ermittelten jährlichen Konzentrationen für  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  lassen sich somit für die jeweiligen Stationen minimale und maximale Depositionsraten sowie eine mittlere Depositionsrate berechnen. In Tabelle 7 sind die Ergebnisse für die jährlichen  $^{129}\text{I}$ -Depositionsraten in  $10^{-12} \text{g/m}^2$  gezeigt.

Da die jährlichen Depositionsraten aus den durchschnittlichen jährlichen Konzentrationen berechnet worden sind, sind die Werte aus Hannover erwartungsgemäß am höchsten. Dies stimmt gut mit der Entfernung der Probenahmeorte zur Küste überein.

## Ergebnisse und Diskussion

Tabelle 7: Abschätzung der jährlichen  $^{129}\text{I}$ -Depositionsraten durch Aerosole in  $10^{-12} \text{ g/m}^2$

Station	Minimum*	Maximum**	Mittel***
Hannover	$9,7 \pm 0,4$	$194 \pm 8$	$102 \pm 4$
Offenbach	$5,7 \pm 0,2$	$113 \pm 5$	$59 \pm 2$
Freiburg	$2,9 \pm 0,1$	$58 \pm 2$	$30 \pm 1$
Potsdam	$7,5 \pm 0,4$	$150 \pm 7$	$79 \pm 4$

\*:  $v_d = 0,001 \text{ m/s}$ , \*\*:  $v_d = 0,02 \text{ m/s}$ , \*\*\*:  $v_d = 0,0105 \text{ m/s}$

Auch für  $^{127}\text{I}$  sind jährliche Depositionsraten berechnet worden. Die Ergebnisse in  $10^{-6} \text{ g/m}^2$  zeigt Tabelle 8:

Tabelle 8: Abschätzung der jährlichen  $^{127}\text{I}$ -Depositionsrate durch Aerosole in  $10^{-6} \text{ g/m}^2$

Station	Minimum*	Maximum**	Mittel***
Hannover	$61 \pm 2$	$1212 \pm 41$	$636 \pm 22$
Offenbach	$58 \pm 3$	$1157 \pm 61$	$608 \pm 32$
Freiburg	$96 \pm 5$	$1912 \pm 103$	$1004 \pm 54$
Potsdam	$120 \pm 7$	$2397 \pm 147$	$1258 \pm 77$

\*:  $v_d = 0,001 \text{ m/s}$ , \*\*:  $v_d = 0,02 \text{ m/s}$ , \*\*\*:  $v_d = 0,0105 \text{ m/s}$

Wie schon aufgrund der mittleren Konzentrationen zu erwarten ist, werden die höchsten Werte in Potsdam gefunden. Hier scheint die Nähe zur Großstadt Berlin den Gehalt an stabilem Iod im Aerosol stark zu beeinflussen. Durch die Nutzung fossiler Brennstoffen wie z.B. Kohle in Industrie und im privaten Bereich wird dort lokal viel Iod freigesetzt, das sich an Aerosolpartikel anlagert und so wieder deponiert wird.

In Abbildung 47 sind die mittleren jährlichen  $^{129}\text{I}$ -Depositionsraten in  $10^{-12} \text{ g/m}^2$  dargestellt. Die mittleren jährlichen  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen in  $10^{-6} \text{ g/m}^2$  werden in Abbildung 48 gezeigt.

Die  $^{129}\text{I}$ -Deposition ist im Norden (Hannover,  $102 \cdot 10^{-12} \text{ g/m}^2$ ) am höchsten. In Potsdam ( $79 \cdot 10^{-12} \text{ g/m}^2$ ) sind die Werte etwas höher als in Offenbach ( $59 \cdot 10^{-12} \text{ g/m}^2$ ), welches jedoch auch weiter von der Küste entfernt ist. Die niedrigsten Werte fanden sich erwartungsgemäß in Freiburg ( $30 \cdot 10^{-12} \text{ g/m}^2$ ).

Die  $^{127}\text{I}$ -Werte sind hingegen unabhängig von der Küste. Der in Potsdam gefundene Wert ( $1.258 \cdot 10^{-6} \text{ g/m}^2$ ) ist etwa doppelt so hoch wie die Werte aus Hannover ( $636 \cdot 10^{-6} \text{ g/m}^2$ ) und Offenbach ( $608 \cdot 10^{-6} \text{ g/m}^2$ ). Der Wert für Freiburg ( $1.004 \cdot 10^{-6} \text{ g/m}^2$ ) liegt deutlich über denen aus Offenbach und Hannover, ist jedoch ebenfalls deutlich kleiner als der aus Potsdam. Er könnte durch Resuspension des Bodens beeinflusst sein. Dies wird in Abschnitt 5.5 näher betrachtet werden.



$^{129}\text{I}$ -Depositionsraten

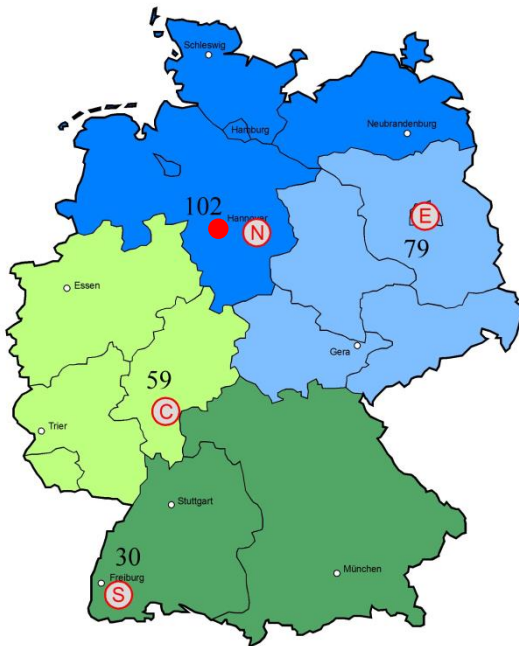


Abbildung 47: Durchschnittliche jährliche  $^{129}\text{I}$ -Deposition im Aerosol in  $10^{-12} \text{ g/m}^2$

$^{127}\text{I}$ -Depositionsraten

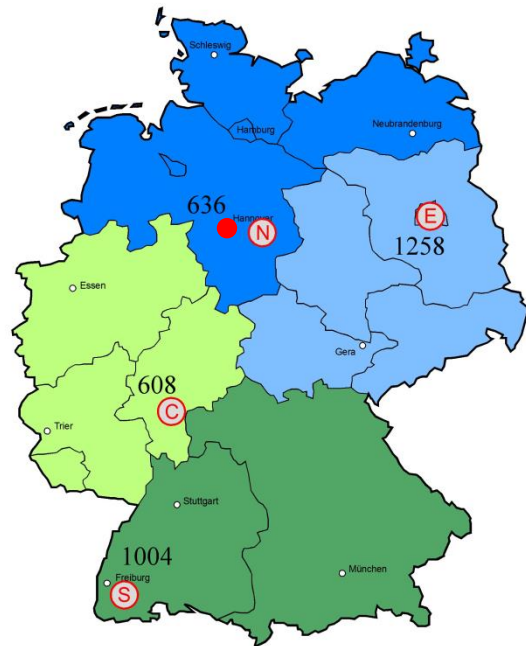


Abbildung 48: Durchschnittliche jährliche  $^{127}\text{I}$ -Deposition im Aerosol in  $10^{-6} \text{ g/m}^2$

Die  $^{129}\text{I}$ -Deposition durch die Aerosole wird mit der Entfernung zur Nordsee kleiner. Bei den  $^{127}\text{I}$ -Werten lässt sich dieses Verhalten nicht beobachten.

In Abbildung 49 sind die mittleren jährlichen  $^{129}\text{I}$ -Depositionsraten in Abhängigkeit von der Entfernung der Messstationen zur Nordsee aufgetragen. Die gleiche Auftragung ist in Abbildung 50 für die mittleren jährlichen  $^{127}\text{I}$ -Depositionsraten zu sehen.

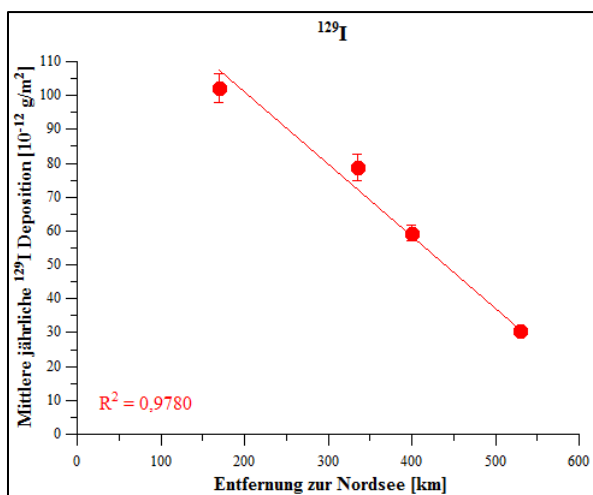


Abbildung 49: Mittlere  $^{129}\text{I}$ -Deposition durch Aerosole in  $10^{-12} \text{ g/m}^2$  in Abhängigkeit von der Entfernung zur Nordsee in km

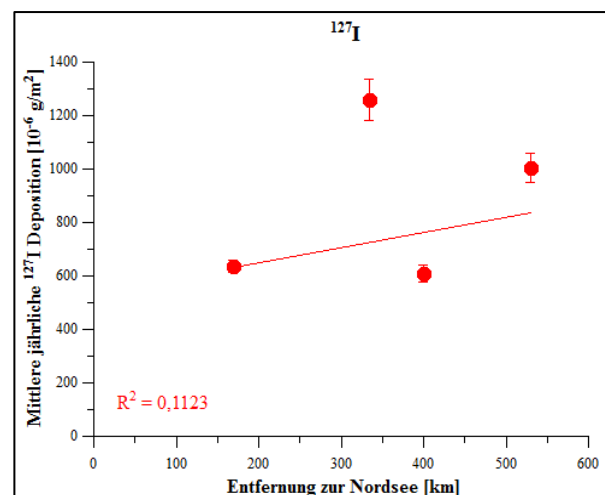


Abbildung 50: Mittlere  $^{127}\text{I}$ -Deposition durch Aerosole in  $10^{-6} \text{ g/m}^2$  in Abhängigkeit von der Entfernung zur Nordsee in km

Für die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte zeigt sich der erwartete Trend ( $R^2 = 0,9780$ ) einer linearen Abnahme mit größerer Entfernung zur Nordsee. Es lässt sich ebenso wie für die Niederschläge bestätigen, dass die Hauptquelle des  $^{129}\text{I}$  die Nordsee ist [29, 31, 37, 48].

Im Gegensatz dazu ergibt sich für  $^{127}\text{I}$  kein Zusammenhang ( $R^2 = 0,1123$ ) zwischen der Entfernung der Stationen von der Nordsee und den ermittelten Werten. Hier dominieren offensichtlich lokale Quellen, wie z.B. Resuspension von Bodenpartikeln oder, ähnlich wie beim Niederschlag, Industrie und große Städte [76].

In der Literatur werden unterschiedliche Angaben darüber gemacht, ob zwischen der Deposition von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  ein Zusammenhang besteht, wie in Abschnitt 1 beschrieben ist.

Bei der Auftragung der in dieser Arbeit gemessenen mittleren jährlichen Depositionsraten in Abhängigkeit voneinander konnte keinerlei Korrelation ( $R^2 = 0,0529$ ) festgestellt werden. Die beiden Isotope stammen demnach nicht aus derselben Quelle.

### 5.2.2 Braunschweig

Es ist zu Beginn dieses Projektes vorgesehen gewesen, die Aerosolfilter aus den Sammlern der vier IMIS Messstellen zu vergleichen. Wie in 4.1.2.2 beschrieben, ist von der PTB jeweils ein Teil eines Polypropylenfilters aus einem *high volume sampler* (Abbildung 51) zur Verfügung gestellt worden, von den anderen Stationen dagegen die Glasfaser-Vorfilter aus den Iodfallen. Es hat sich herausgestellt, dass die gemessenen  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen für die verschiedenen Filtermaterialien deutlich unterschiedlich sind. Deshalb ist für Braunschweig eine Vergleichsmessung mit einer baugleichen Iodfalle wie sie die anderen Stationen verwendet haben durchgeführt worden. Die Messungen haben über einen Zeitraum von zehn Wochen von Juli bis September 2012 stattgefunden. Die Anlage (Abbildung 52) ist von der agrarmeteorologischen Station des DWD in Braunschweig betreut worden.

Sowohl die Proben aus der Agrarmeteorologie (Agrar) als auch die zur selben Zeit beaufschlagten Filter der PTB sind wochenweise analysiert worden. Für die Woche von 3.9. - 11.9. liegen nur Daten der Agrarmeteorologie vor. Dabei haben sich sehr unterschiedliche Tendenzen ergeben.



Abbildung 51: High volume sampler der PTB [77]



Abbildung 52: Bauwagen zur Unterbringung der Iodfalle der Agrarmeteorologie (DWD)

Der Mittelwert der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration der im betrachteten Zeitraum von der PTB gesammelten Proben ( $20,0 \cdot 10^{-17} \text{ g/m}^3$ ) ist mehr als dreimal so hoch wie der der Proben aus der Iodfalle der Agrarmeteorologie ( $6,7 \cdot 10^{-17} \text{ g/m}^3$ ). Verglichen werden die Werte mit dem für August 2012 aus Hannover, da dieser einen ähnlichen Sammelzeitraum abbildet. Dieser Wert stimmt sehr gut mit dem Mittelwert der PTB überein.

Für  $^{127}\text{I}$  liegen die Werte der Agrarmeteorologie im selben Bereich wie die anderen Stationen ( $0,5 - 9,5 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ ), während die der PTB sich nur mit dem unteren Bereich überschneiden. Dies zeigt sich auch in den mittleren  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen. Der Wert der Agrarmeteorologie ( $4,1 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ ) liegt in der gleichen Größenordnung wie der Mittelwert von Potsdam ( $3,8 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ ). Dort wird der höchste Wert der vier Vergleichsstationen gemessen.

Der Mittelwert der PTB-Proben für  $^{127}\text{I}$  ( $0,66 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ ) ist dagegen fast um den Faktor drei kleiner als der niedrigste Wert der Vergleichsstationen (Offenbach  $1,8 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ ).

Durch die sehr unterschiedlichen Ergebnisse für die  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Gehalte ergeben sich große Unterschiede in den Isotopenverhältnissen. In der in Abbildung 53 gezeigten Darstellung der Ergebnisse wird deshalb eine Achsenunterbrechung zwischen 60 - 100 eingefügt und die Skalierung nach der Unterbrechung von Zehner-Intervallen auf Zweihunderter-Intervalle angepasst.

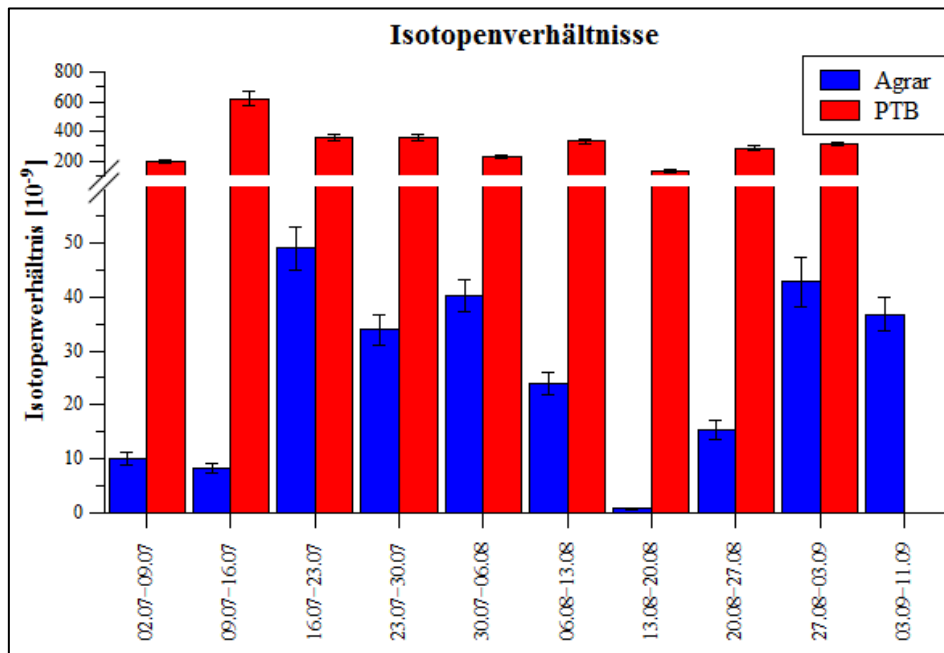


Abbildung 53: Ergebnisse der Vergleichsmessung in Braunschweig für die Isotopenverhältnisse

Wird der Mittelwert der Agrarmeteorologie mit dem berechneten Isotopenverhältnis für August 2012 ( $33,4 \cdot 10^{-9}$ ) in Hannover verglichen, so stimmen diese recht gut überein.

Mit einem baugleichen Messgerät lassen sich demnach an benachbarten Orten vergleichbare Werte für die Isotopenverhältnisse ermitteln.

Für den Vergleich der vier Messstationen sind deshalb die Daten der Aerosolfilter der DWD-Station in Hannover-Langenhagen verwendet worden.

Eine mögliche Erklärung für die unterschiedlichen Ergebnisse aus Braunschweig liegt in der unterschiedlichen Sammeleffizienz von Faser- und Membranfiltern [78].

Die Ergebnisse aus Braunschweig werden im Anhang 7.2 ausführlicher diskutiert.

### 5.3 Boden

Um die Ergebnisse der Bodenproben übersichtlicher darstellen zu können, sind sie in vier Gruppen eingeteilt worden. Dabei ist, wie bei den Niederschlagsproben, die geographische Lage der Probenahmeorte als Grundlage genommen worden. Daraus hat sich folgende Einteilung ergeben: Zum Norden gehören Biendorf, Geesthacht, Hannover, Kiel, Nordenham, Norderney und Schleswig. Dem Westen sind Bad Arolsen, Bielefeld, Breungeshain, Essen, Ludwigshöhe und Trier zugeordnet. In den Süden sind Freiburg, Fürstzell, Kempten, Lahr, Nürnberg, Oberweißbach, Puch und Stötten eingeteilt. Als Osten sind Ankershagen, Dresden, Görlitz, Gohre, Kerkow, Neu Boltenhagen, Potsdam und Sophienhof betrachtet worden.

Zuerst werden, wie bei den anderen Kompartimenten, die Daten der Iodmessung besprochen. Die Daten aus Aachen werden in einem eigenen Kapitel behandelt, da die Station ein Beispiel für eine bearbeitete Fläche darstellt. Im dritten Teil dieses Kapitels werden die Ergebnisse der untersuchten Bodenparameter vorgestellt und diese mit den ermittelten Iodwerten verglichen. Dadurch soll festgestellt werden, ob sich die in der Literatur gefundenen Zusammenhänge zwischen Iod und bestimmten Bodenparametern bestätigen lassen.

### 5.3.1 Ergebnisse der Iodmessungen

Es wird angenommen, dass das  $^{129}\text{I}$  durch nasse und trockene Deposition in den Boden gelangt [21, 39]. Dort wird es von verschiedenen Bodenbestandteilen festgehalten und migriert nur langsam in die unteren Bodenschichten. Abbildung 54 -Abbildung 57 zeigen die Ergebnisse der gemessenen  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen im Tiefenprofil. Da jeweils mehrere Zentimeter mächtige Schichten beprobt worden sind, wird für die Auftragung immer der Mittelpunkt der jeweiligen Schicht zur Darstellung gewählt. Die y-Achse ist für die Auftragung der Werte logarithmisch skaliert worden.

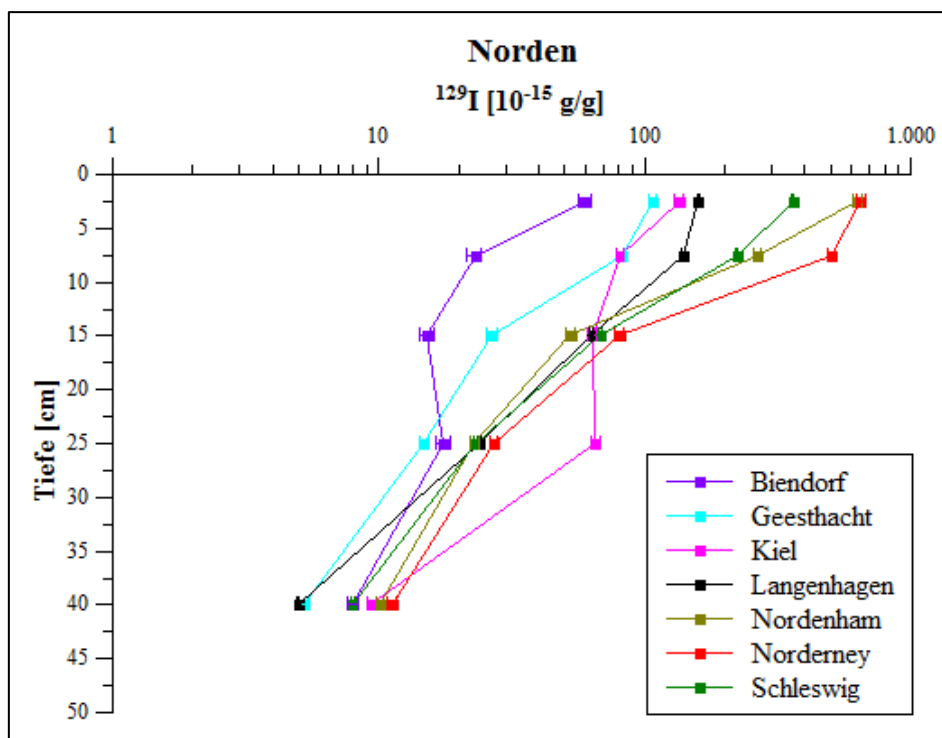


Abbildung 54:  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Norden)

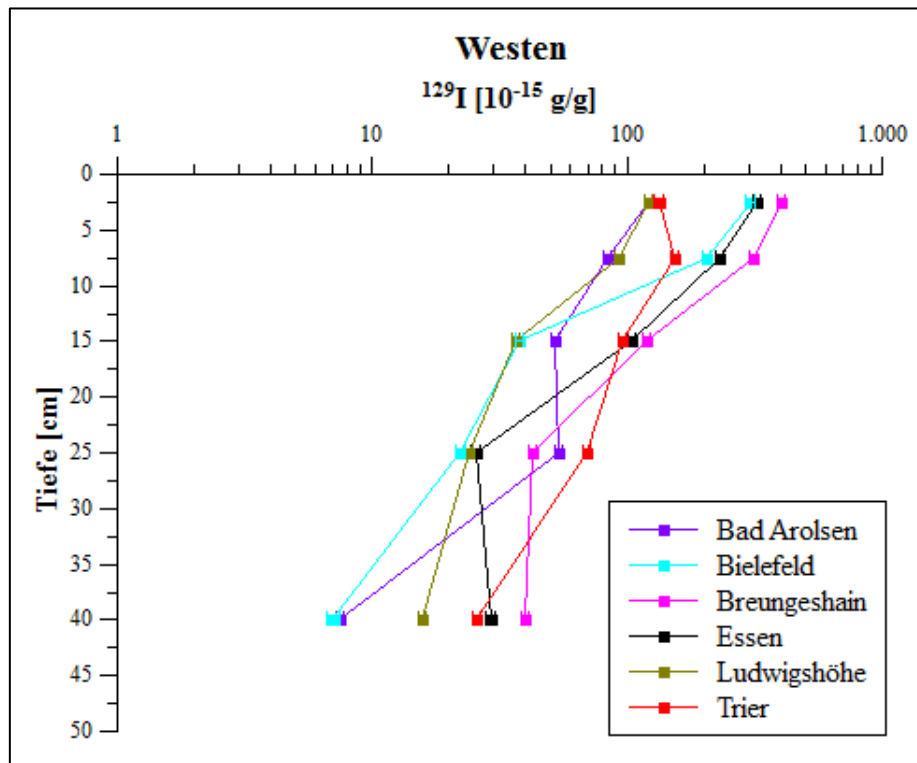


Abbildung 55:  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Westen)

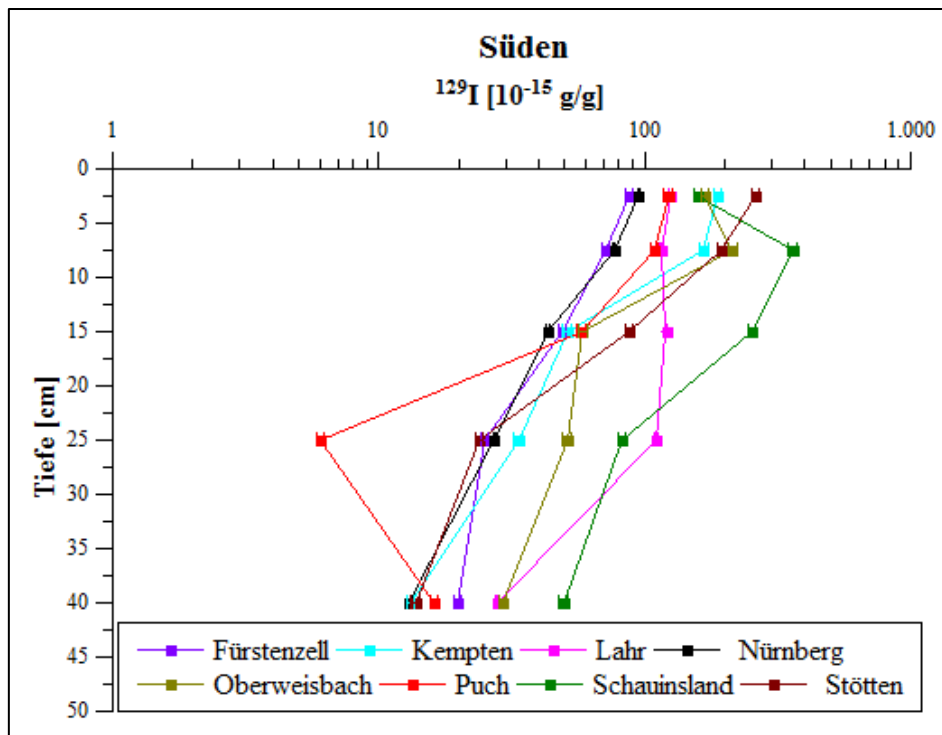


Abbildung 56:  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Süden)

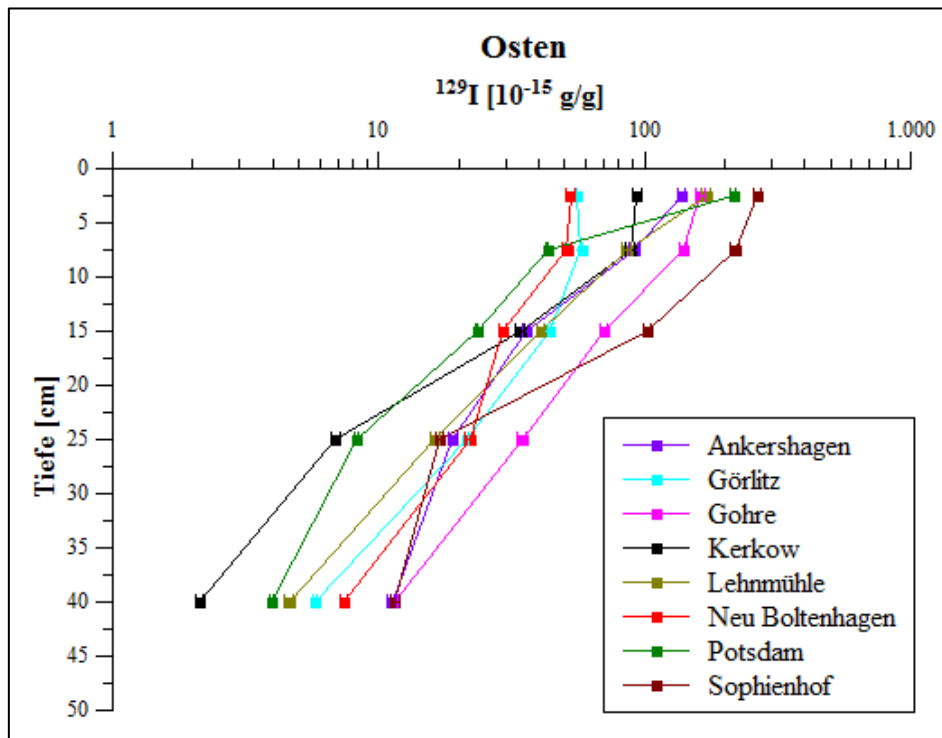


Abbildung 57:  $^{129}\text{I}$  Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Osten)

Bis auf wenige Ausnahmen zeigen alle Profile den erwarteten Verlauf einer exponentiellen Abnahme der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration. In den oberen 5 cm werden Werte zwischen  $53 - 650 \cdot 10^{-15} \text{ g/g}$  gefunden. Die höchsten Werte finden sich erwartungsgemäß im Norden (Norderney, Nordenham und Schleswig) und im Westen (Breungeshain, Essen und Bielefeld). Die niedrigsten Werte ergeben sich im Nordosten (Neu Boltenhagen) und Osten (Görlitz). In der untersten gemessenen Schicht (30 - 50 cm) sind die Werte deutlich niedriger ( $2 - 49 \cdot 10^{-15} \text{ g/g}$ ). Auch hier findet sich der niedrigste Wert im Osten, der höchste jedoch im Südwesten auf dem Schauinsland.

Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentration in den Bodenprofilen sollte mit der Tiefe nahezu konstant sein, da sich das stabile Iod im Gleichgewicht zwischen Ein- und Austrag befindet. Dabei spielt der Eintrag aus der Atmosphäre eine deutlich größere Rolle als die Verwitterung des Ausgangsgesteins [46, 65, 73]. Ändert sich jedoch die Zusammensetzung des Bodens mit der Tiefe stark, so kann es sein, dass sich auch der  $^{127}\text{I}$ -Gehalt ändert. In Abbildung 58 - Abbildung 61 sind die Ergebnisse der  $^{127}\text{I}$ -Messungen dargestellt. Auch hier ist die y-Achse logarithmisch skaliert.

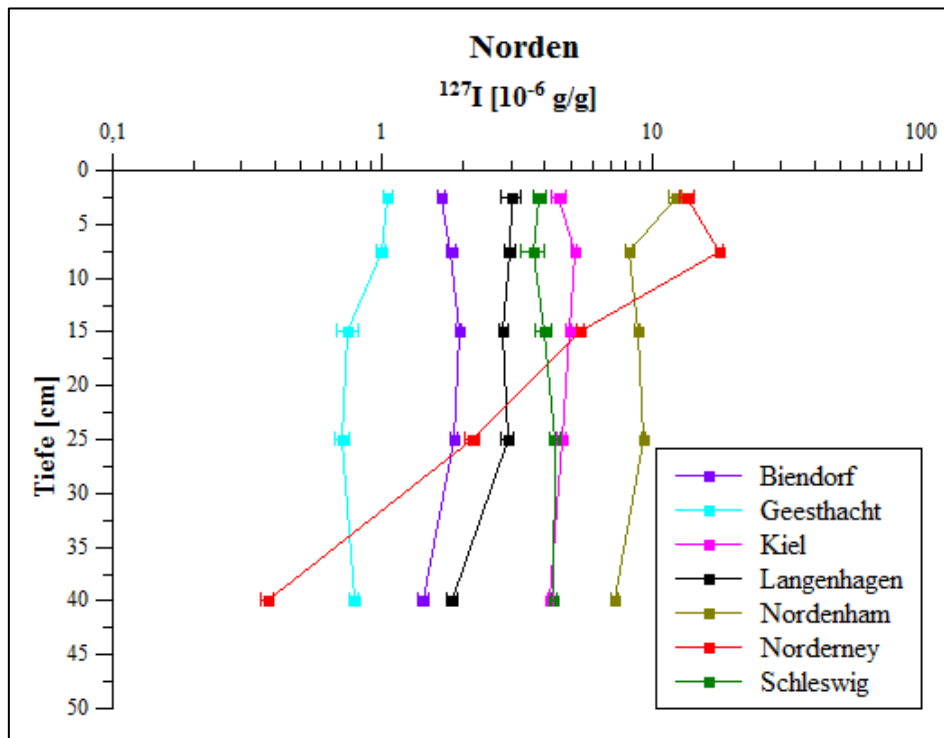


Abbildung 58:  $^{127}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Norden)

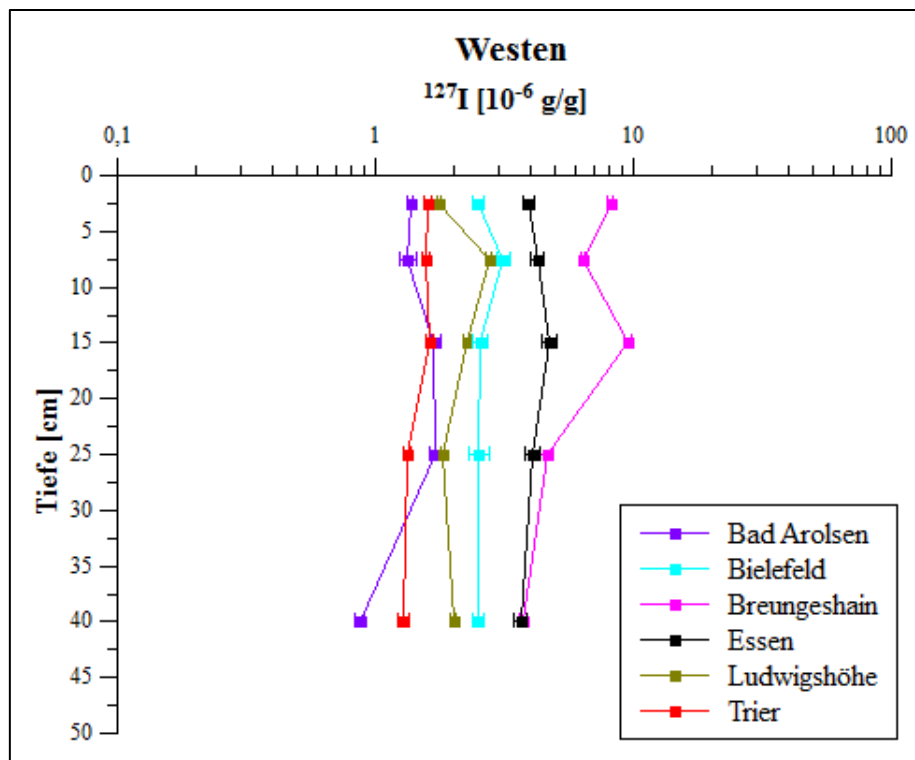


Abbildung 59:  $^{127}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Westen)



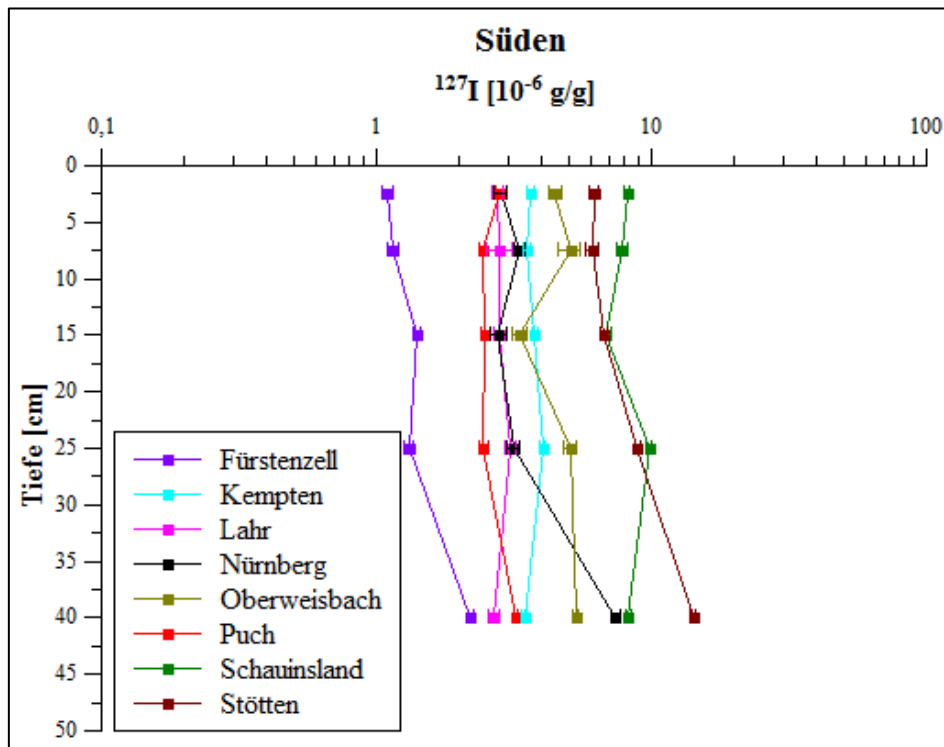


Abbildung 60:  $^{127}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Süden)

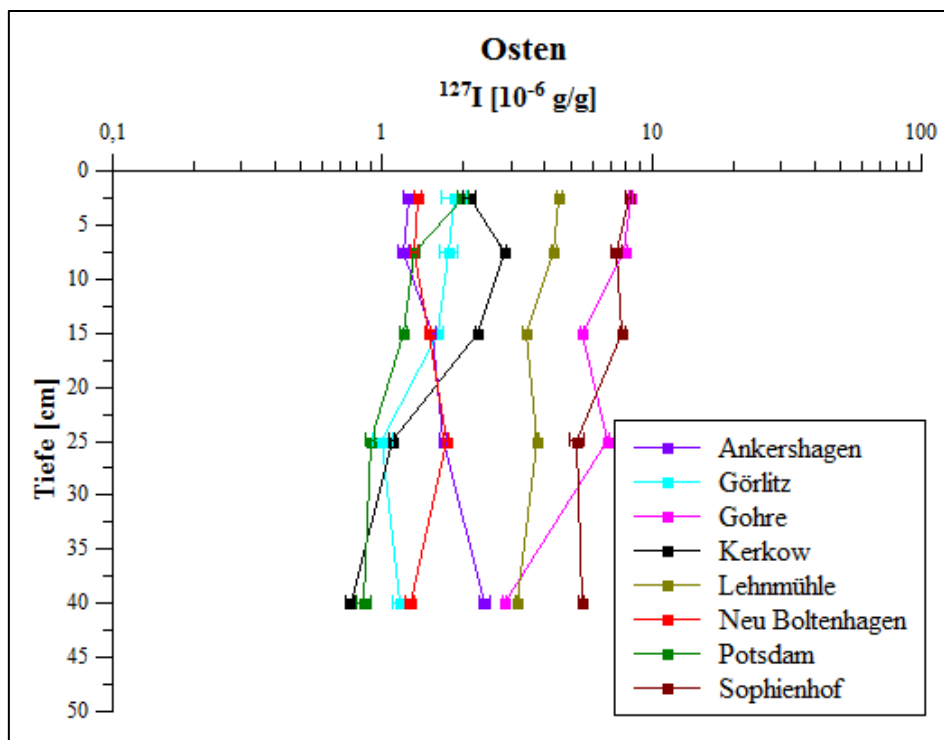


Abbildung 61:  $^{127}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Osten)

Die meisten Profile zeigen den erwarteten konstanten Verlauf mit der Tiefe. In den oberen 5 cm reichen die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen von  $1 - 13 \cdot 10^{-6}$  g/g. Die höchsten Werte finden sich im Norden (Norderney und Nordenham), die niedrigsten im Norden und Süden (Geesthacht und

## Ergebnisse und Diskussion

Fürstenzell). Im Mittel liegt die  $^{127}\text{I}$ -Konzentration in der obersten Schicht bei  $4,1 \cdot 10^{-6} \text{ g/g}$ . Dieser Wert stimmt gut mit den von Whitehead ( $5 \cdot 10^{-6} \text{ g/g}$ ) und Hou ( $1 - 3 \cdot 10^{-6} \text{ g/g}$ ) angegebenen Werten überein [37, 46].

In den untersten 20 cm liegen die Werte zwischen  $0,4 - 14 \cdot 10^{-6} \text{ g/g}$ , also fast identisch mit der obersten Schicht und ebenfalls in guter Übereinstimmung mit der Literatur ( $1 - 3 \cdot 10^{-6} \text{ g/g}$ ) [37]. Allerdings findet sich der höchste Wert hier im Süden (Stötten) und in allen Regionen lassen sich Standorte mit sehr niedrigen Iodgehalten in einer Tiefe von 30 - 50 cm finden. Die Gehalte an  $^{127}\text{I}$  sind also deutlich stärker von den Bodeneigenschaften abhängig. Eine direkte Beeinflussung durch die Nordsee ist nur bis zu einer Entfernung von ca. 50 km zu beobachten.

Die berechneten Isotopenverhältnisse werden hauptsächlich durch die Unterschiede in den  $^{129}\text{I}$ -Gehalten beeinflusst. Nur bei einigen Ausnahmen, wie z.B. Norderney, wo sich der Verlauf der  $^{127}\text{I}$ -Konzentration ebenfalls stark ändert, wirkt sich der  $^{127}\text{I}$ -Gehalt auf das Isotopenverhältnis signifikant aus. Auf die Besonderheit der Fläche auf Norderney wird bei den Bodenparametern genauer eingegangen. Die Abbildung 62 - Abbildung 65 zeigen die Ergebnisse zur Berechnung der Isotopenverhältnisse. Die y-Achse ist wiederum logarithmisch skaliert worden.

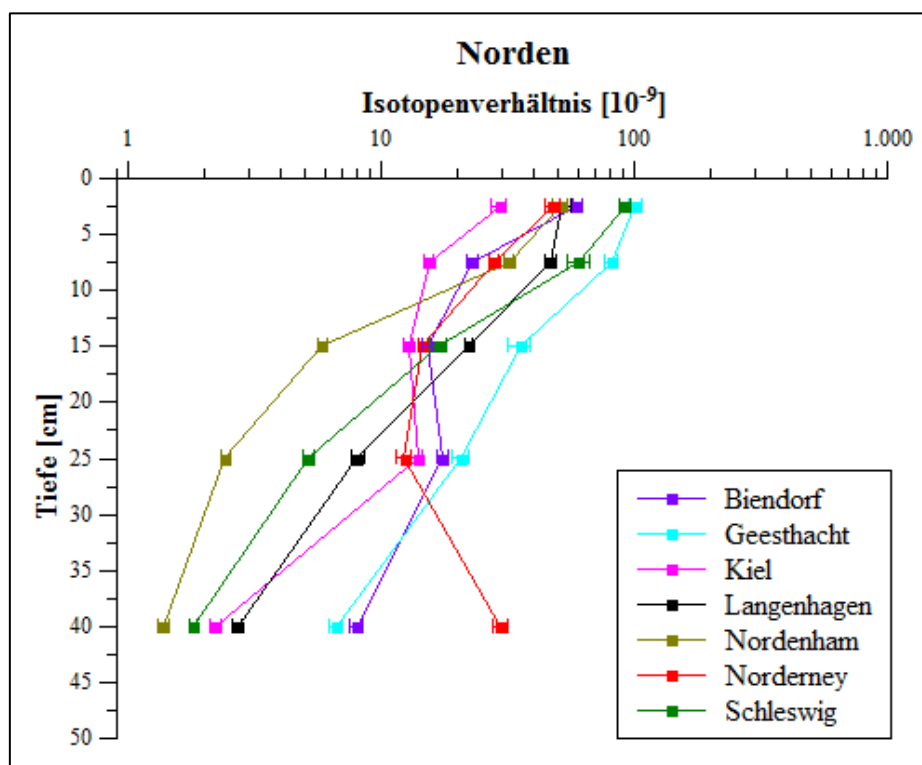


Abbildung 62: Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von der Tiefe für Bodenproben aus dem Norden

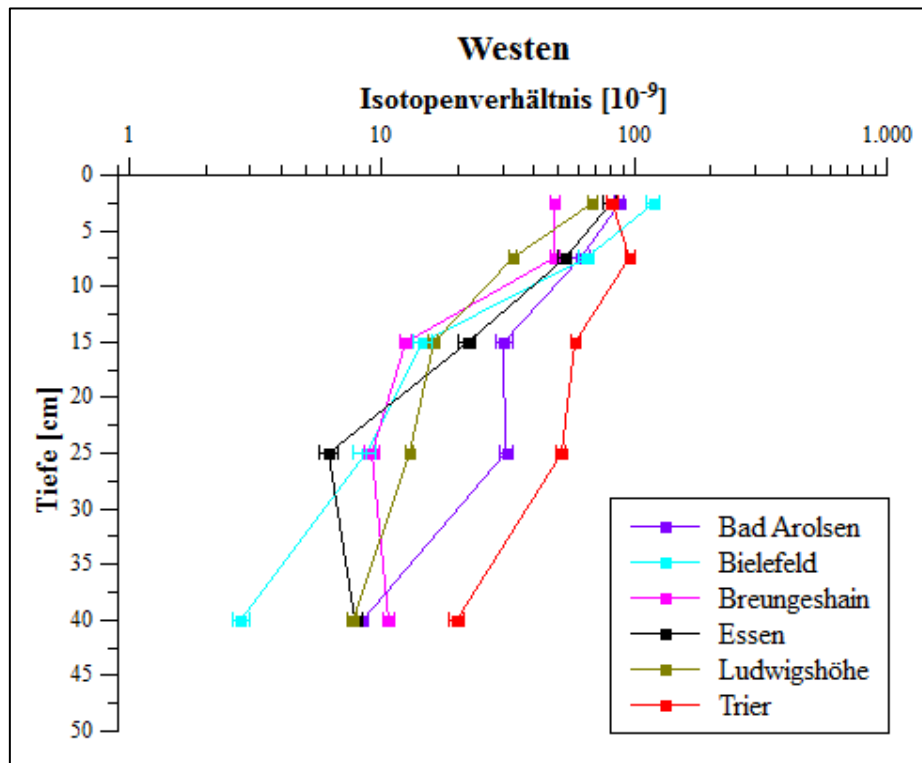


Abbildung 63: Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von der Tiefe für Bodenproben aus dem Westen

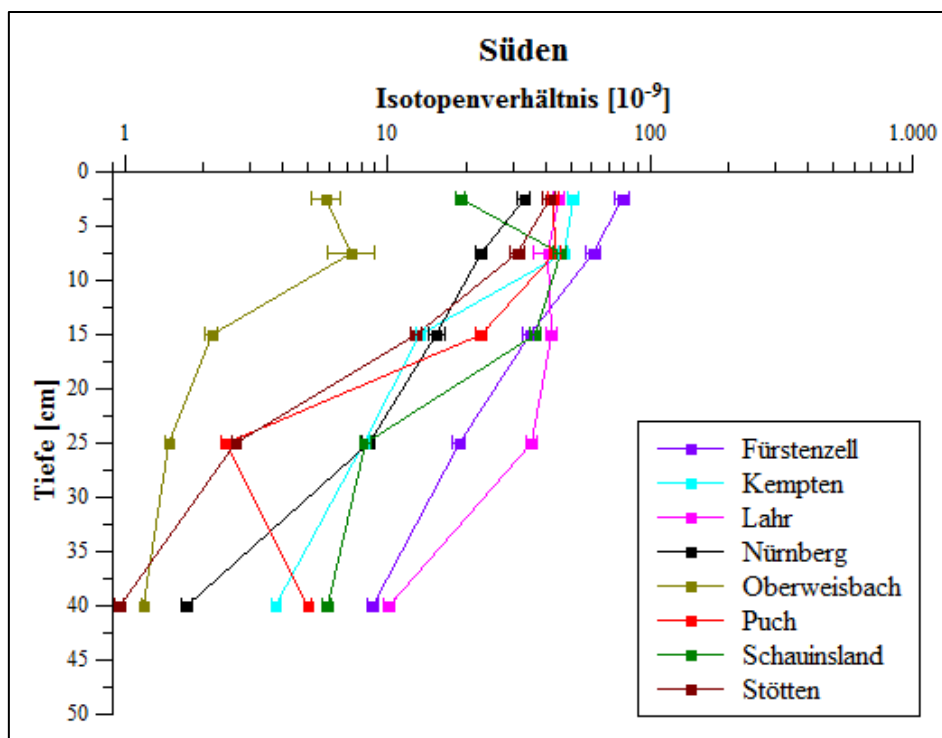


Abbildung 64: Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von der Tiefe für Bodenproben aus dem Süden

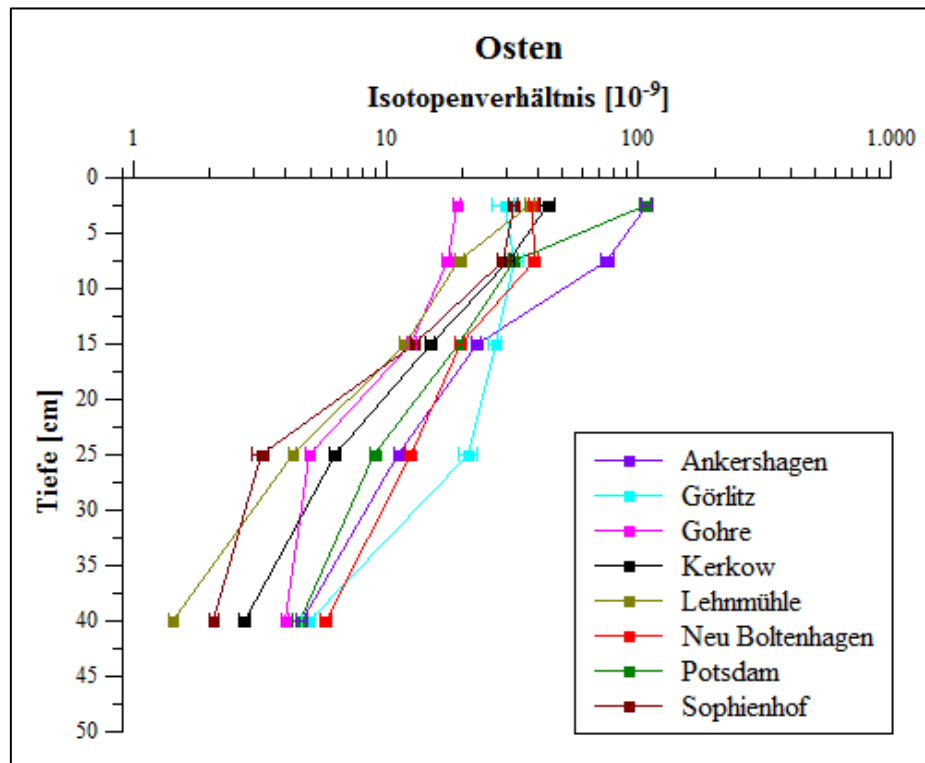


Abbildung 65: Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von der Tiefe für Bodenproben aus dem Osten

Die gefundenen Isotopenverhältnisse reichen in der obersten Schicht von  $19 - 119 \cdot 10^{-9}$ . Die niedrigsten Werte werden wie erwartet im Süden (Schauinsland) und Osten (Gohre) gefunden.

Den höchsten Wert liefert die Probe aus Bielefeld (Westen). Allerdings lassen sich auch im Osten (Ankershagen,  $108 \cdot 10^{-9}$  und Potsdam,  $106 \cdot 10^{-9}$ ) Orte mit sehr hohen Isotopenverhältnissen finden. Beide Stationen weisen jedoch sehr niedrige  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen ( $1,2 \cdot 10^{-6} \text{ g/g}$  und  $2 \cdot 10^{-6} \text{ g/g}$ ) auf, wodurch sich die relativ hohen Isotopenverhältnisse erklären lassen. Auffällig ist auch der unerwartet niedrige Wert von  $29 \cdot 10^{-9}$  aus Kiel. Dieser lässt sich durch einen für den Norden Deutschlands eher niedrigen  $^{129}\text{I}$ -Gehalt ( $134 \cdot 10^{-15} \text{ g/g}$ ) und einen dafür hohen  $^{127}\text{I}$ -Gehalt von  $4,5 \cdot 10^{-6} \text{ g/g}$  erklären. Das  $^{129}\text{I}$ -Profil weist einen relativ flachen Verlauf auf, d.h. der Gehalt sinkt mit der Tiefe nicht so stark ab, bzw. ist in den oberen Schichten nicht besonders hoch.

In der untersten Schicht sind die Isotopenverhältnisse für alle Profile wie erwartet deutlich niedriger ( $1 - 29 \cdot 10^{-9}$ ) als im Oberboden. Der mit Abstand höchste Wert stammt von Norderney. Er lässt sich durch eine sehr niedrige  $^{127}\text{I}$ -Konzentration ( $0,4 \cdot 10^{-6} \text{ g/g}$ ) im Boden erklären. Die niedrigsten Werte finden sich im Norden (Nordenham), Osten (Lehmühle) und Süden (Stötten). In Nordenham und Stötten weisen die Böden sehr hohe  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen ( $7$  und  $14 \cdot 10^{-6} \text{ g/g}$ ) auf, wodurch sich die sehr niedrigen Isotopenverhältnisse erklären lassen.

## Ergebnisse und Diskussion

In Lehmühle ist dagegen der  $^{129}\text{I}$ -Gehalt verhältnismäßig niedrig ( $4,6 \cdot 10^{-15} \text{ g/g}$ ) während der  $^{127}\text{I}$ -Gehalt im mittleren Bereich ( $3 \cdot 10^{-6} \text{ g/g}$ ) der gemessenen Werte liegt, was ebenfalls in einem niedrigen Isotopenverhältnis resultiert.

Anhand der in der Literatur gefundenen Daten lassen sich Isotopenverhältnisse zwischen  $10^{-8}$  -  $10^{-7}$  erwarten. Genau wie von Aumann beschrieben, sind auch in dieser Arbeit im Norden bzw. Westen die höchsten Isotopenverhältnisse gefunden worden [34]. Sie liegen ebenfalls im Bereich von  $10^{-7}$ . Die meisten Proben liefern Isotopenverhältnisse von  $10^{-8}$ , was ebenfalls gut mit der Literatur übereinstimmt [3, 4, 7, 12, 36]. Zudem wird, wie von Muramatsu berichtet, eine Abnahme des Isotopenverhältnisses mit der Tiefe festgestellt [39].

Um das vorhandene Iodinventar in den oberen 50 cm der Böden für eine Fläche von einem Quadratmeter zu bestimmen, sind die gefundenen Iodgehalte mit den Lagerungsdichten ( $\text{g/m}^3$ ) der jeweiligen Bodenschichten und deren Schichtdicke (cm) umgerechnet worden. Die Lagerungsdichten sind mit der in 4.1.4.5 beschriebenen Methode ermittelt worden. In Abbildung 66 sind die Depositionsdichten des  $^{129}\text{I}$  in  $10^{-9} \text{ g/m}^2$  dargestellt. Abbildung 67 zeigt Depositionsdichten des  $^{127}\text{I}$  in  $\text{g/m}^2$ :

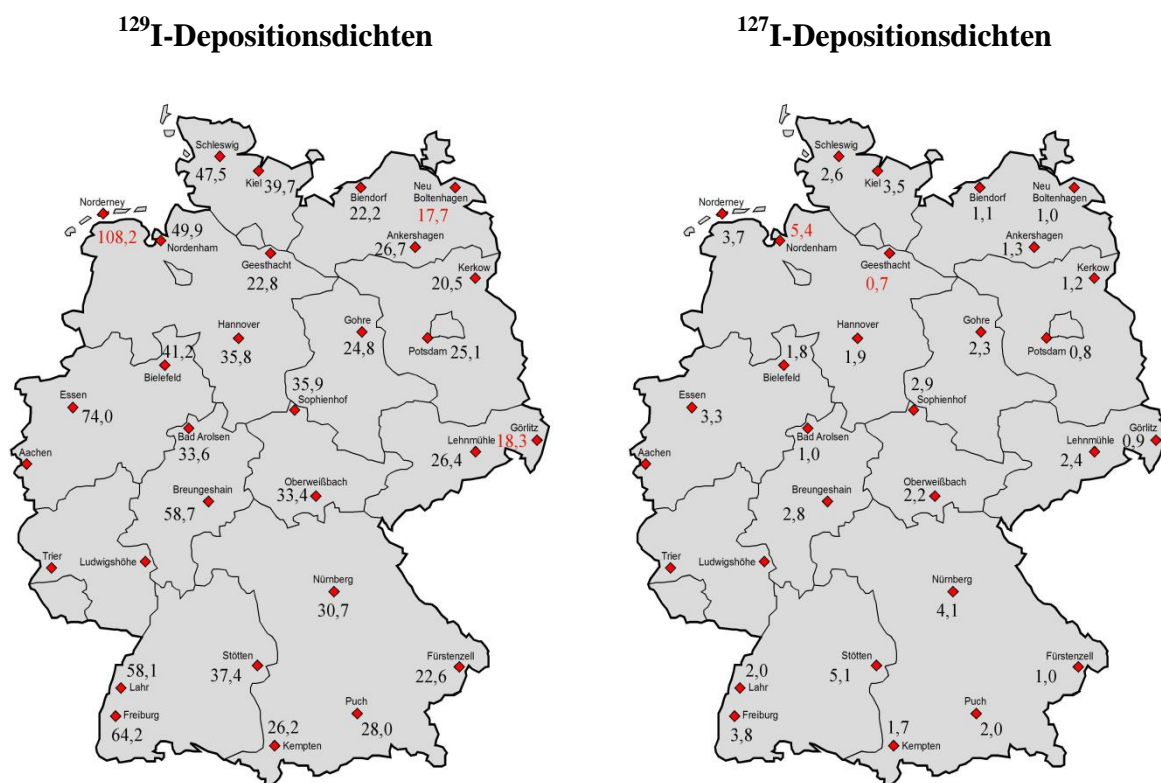


Abbildung 66:  $^{129}\text{I}$ -Depositionsdichten im Boden in  $10^{-9} \text{ g/m}^2$ , rote Beschriftung = höchster und niedrigste Werte

Abbildung 67:  $^{127}\text{I}$ -Depositionsdichten im Boden in  $\text{g/m}^2$ , rote Beschriftung = höchster und niedrigster Wert

In Ludwigshöhe und Trier konnten aus technischen Gründen (zu harter Boden bzw. zu viele große Steine) keine Lagerungsdichten bestimmt werden, sodass auch keine Depositionsdichten berechnet werden konnten.

Die Depositionsdichten für  $^{129}\text{I}$  reichen von  $17,7 - 108,2 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^2$ . Insgesamt bestätigt sich die Annahme, dass die Werte von Norden nach Süden und von Westen nach Osten abnehmen. Der höchste Wert fand sich auf Norderney, die niedrigsten in Neu Boltenhagen und Görlitz.

Es lassen sich jedoch einige Ausnahmen beobachten. In Geesthacht ( $22,8 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^2$ ) ist die Depositionsdichte nur halb so groß wie in Bielefeld ( $41,2 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^2$ ). Allerdings scheint dieser Boden generell wenig Iod zu enthalten, da dort auch die niedrigste Depositionsdichte für  $^{127}\text{I}$  gefunden wurde. Im übernächsten Abschnitt wird überprüft, ob sich dieses Ergebnis anhand der Bodenparameter erklären lässt.

Die Depositionsdichten im Südwesten (Lahr  $58,1 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^2$  und Schauinsland  $64,2 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^2$ ) sind ähnlich hoch, wie die an der Nordseeküste (Nordenham  $55,2 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^2$ ), was ebenfalls nicht den Erwartungen entspricht. Allerdings lässt sich in der Literatur ein vergleichbarer Trend finden. Aumann hat bei seiner Untersuchung von fünf Bodenproben (entnommen 1994 - 1995) aus Deutschland ebenfalls Werte für die Depositionsdichte für die oberen 60 cm von  $^{129}\text{I}$  bestimmt. Auf Westerland fand er  $311,2 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^2$ , was deutlich höher ist als der Wert von Norderney. Selbst wenn die unteren 10 cm nicht berücksichtigt werden ist der Wert um den Faktor 2,7 höher. Ebenso wie in diesem Projekt hat auch Aumann Proben auf dem Schauinsland genommen. Er gibt ein  $^{129}\text{I}$ -Inventar von  $183,2 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^2$  an. Der Wert ist ebenfalls um den Faktor 2,7 höher als der in diesem Projekt gemessene. Die niedrigste Depositionsdichte hat Aumann im Südosten gemessen, was gut mit den hier gemachten Beobachtungen übereinstimmt. Der Wert im Südwesten (Schauinsland) ist deutlich höher. Insgesamt stimmen die in dieser Arbeit gefundenen Trends gut mit denen von Aumann überein [34]. Es ist jedoch unklar, weshalb er an vergleichbaren Orten deutlich höhere Werte gefunden hat. Möglicherweise liegen die Unterschiede in den unterschiedlichen Messtechniken (Neutronenaktivierungsanalyse (NAA), Aumann und AMS, diese Arbeit) begründet. In der Literatur gibt es nur wenige Studien über den direkten Vergleich von NAA und AMS. Suzuki hat beim Vergleich von Bodenproben aus Japan übereinstimmende Ergebnisse mit NAA und AMS ermittelt [79]. Es wird jedoch auch berichtet, dass die Detektion von  $^{129}\text{I}$  mit NAA durch  $^{127}\text{I}$  gestört werden kann da beide über Neutroneneinfang  $^{130}\text{I}$  bilden können [24, 28, 80]. Hinzu kommt, dass für die Depositionsdichten auch die Lagerungsdichten bestimmt werden müssen. Sie beeinflussen ebenfalls das Endergebnis. Aumann hat auf dem Schauinsland höher Lagerungsdichten bestimmt, was zu höheren

## Ergebnisse und Diskussion

Werten führt. Wird die Depositionsdichte auf dem Schauinsland in dieser Arbeit mit den Lagerungsdichten von Aumann berechnet, liegen ist sein Wert nur noch um den Faktor 1,5 höher. Wird mit den  $^{127}\text{I}$ -Werten von Aumann eine Depositionsdichte für  $^{127}\text{I}$  berechnet, ist dieser um den Faktor 0,8 kleiner als der in dieser Arbeit bestimmte Wert. Die Unterschiede in den Werten können demnach durch verschiedene Probenahme- und Messtechniken erklärt werden. In Bodenproben aus Niedersachsen hat Ernst Depositionsdichten von  $60 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^2$  und  $18 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^2$  für Proben bis in 180 bzw. 170 cm Tiefe gefunden [4]. Die Werte sind in guter Übereinstimmung mit den hier gemessenen. Die größere Beprobungstiefe wirkt sich nicht signifikant aus, da das meiste Iod in den oberen Schichten gefunden wird.

Die Depositionsdichten für  $^{127}\text{I}$  zeigen keine eindeutigen Tendenzen. Sie liegen zwischen  $0,7 - 5,4 \text{ g/m}^2$ . Sowohl der höchste Wert (Nordenham,  $5,4 \text{ g/m}^2$ ) als auch der niedrigste Wert (Geesthacht,  $0,7 \text{ g/m}^2$ ) werden im Norden gefunden. Während die Depositionsdichten im Osten eher niedrig sind lassen sich im Westen und Süden sowohl hohe als auch niedrige Werte finden. Der Südosten weist allerdings wiederum nur niedrige Werte auf.

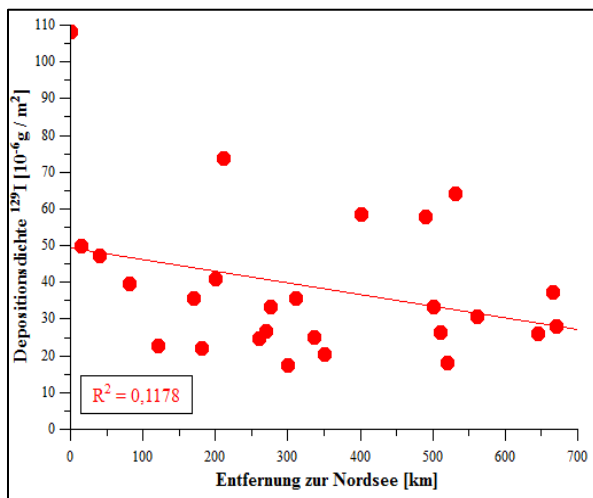


Abbildung 68:  $^{129}\text{I}$ -Depositionsdichte im Boden in Abhängigkeit von der Entfernung zur Nordsee

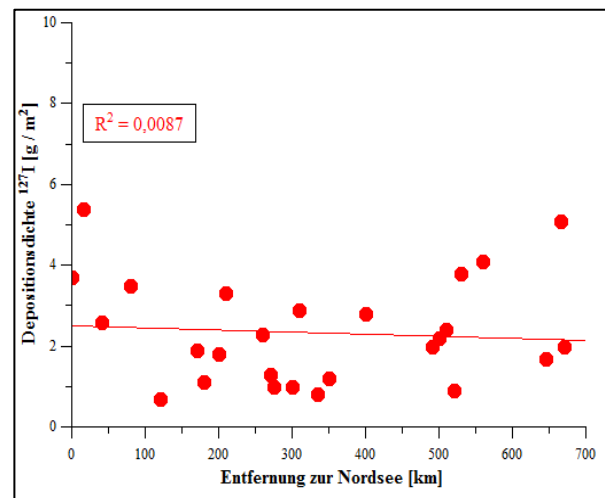


Abbildung 69:  $^{127}\text{I}$ -Depositionsdichte im Boden in Abhängigkeit von der Entfernung zur Nordsee

Wie bei den Niederschlägen und Aerosolen wird außerdem überprüft, ob sich ein Zusammenhang zwischen dem Iodinventar des Bodens und der Entfernung zur Küste feststellen lässt. Bei den Depositionsdichten sowohl des  $^{129}\text{I}$  (Abbildung 68) als auch des  $^{127}\text{I}$  (Abbildung 69) in den oberen 50 cm zeigt sich kein mathematischer Zusammenhang mit der Entfernung zur Nordsee ( $R^2 = 0,1178$  für  $^{129}\text{I}$  und  $R^2 = 0,0087$  für  $^{127}\text{I}$ ). Der höchste Wert für das  $^{129}\text{I}$ -Inventar findet sich zwar im Boden der am nächsten zur Nordsee liegt, danach streuen die Werte jedoch stark und unabhängig von ihrer Entfernung zur Nordsee. Das Iodinventar im Boden hängt von zwei Faktoren ab. Zum einen von den Einträgen, welche im Norden und

Westen deutlich höher sind. Zum anderen davon, wie gut das Iod im Boden festgehalten wird, was von den Bodeneigenschaften beeinflusst wird. Die Bodeneigenschaften sind unabhängig von der Entfernung der Probenahmeorte zur Nordsee. Der fehlende Zusammenhang zwischen dem  $^{129}\text{I}$ -Inventar und der Entfernung zur Nordsee zeigt, dass die Sorption im Boden das Inventar stärker beeinflusst als die Eintragsmenge. Für die  $^{127}\text{I}$ -Depositionsdichten ist überhaupt keine Abhängigkeit von der Entfernung zur Nordsee zu erkennen. Sie wird lediglich von den Bodeneigenschaften beeinflusst. In der Literatur gibt es unterschiedliche Angaben dazu, ob der Iodgehalt im Boden von der Entfernung zur Küste abhängig ist [76]. Whitehead hat in einer Studie über britische Böden, die landwirtschaftlich genutzt werden, keinen Zusammenhang zwischen dem Gehalt an stabilem Iod und der Entfernung zur Küste gefunden, was die Ergebnisse dieser Arbeit bestätigen [65].

### 5.3.2 Aachen

Bei der Probenahme fläche in Aachen handelt es sich um ein Messfeld des DWD. Wie bereits unter 4.1.1.3 beschrieben, ist die Fläche erst zwei Jahren vor der Probenahme angelegt worden. Die Ergebnisse aus Aachen werden deshalb als Beispiel für eine gestörte Fläche behandelt. Es wird erwartet, in den oberen Schichten einen konstanten Verlauf für beide Iodisotope zu finden, da der Boden homogenisiert bzw. neu aufgetragen worden ist. In den unteren Schichten sollte der  $^{129}\text{I}$ -Gehalt dann niedriger werden.

Die gemessenen  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen reichen von  $67,1 - 136,0 \cdot 10^{-15} \text{ g/g}$ . In den oberen 20 cm hat sich erwartungsgemäß innerhalb von zwei Jahren nach der Homogenisierung noch kein Konzentrationsgefälle ausbilden können, da die Migration des Iods im Boden ein langsamer Prozess ist. Da auch die unteren Schichten erhöhte Werte (der Mittelwert der ungestörten Proben liegt bei  $25,3 \cdot 10^{-15} \text{ g/g}$  in 20 - 50 cm Tiefe) aufweisen, ist zu vermuten dass diese ebenfalls mit oberen Bodenschichten vermischt wurden. Dadurch wird mehr Iod in die unteren Schichten verlagert, als es durch natürliche Transportvorgänge der Fall gewesen wäre.

Beim  $^{127}\text{I}$  finden sich Gehalte von  $2,1 - 2,7 \cdot 10^{-6} \text{ g/g}$ . Sie schwanken nur wenig mit der Tiefe. Es ist deshalb davon auszugehen, dass der neu aufgetragene Boden einen ähnlichen Iodgehalt aufwies wie der ursprüngliche.

Die berechneten Isotopenverhältnisse werden mit der nächstgelegenen ungestörten Messstation (Essen, ca. 100 km nordöstlich) verglichen, was in Abbildung 70 gezeigt ist.



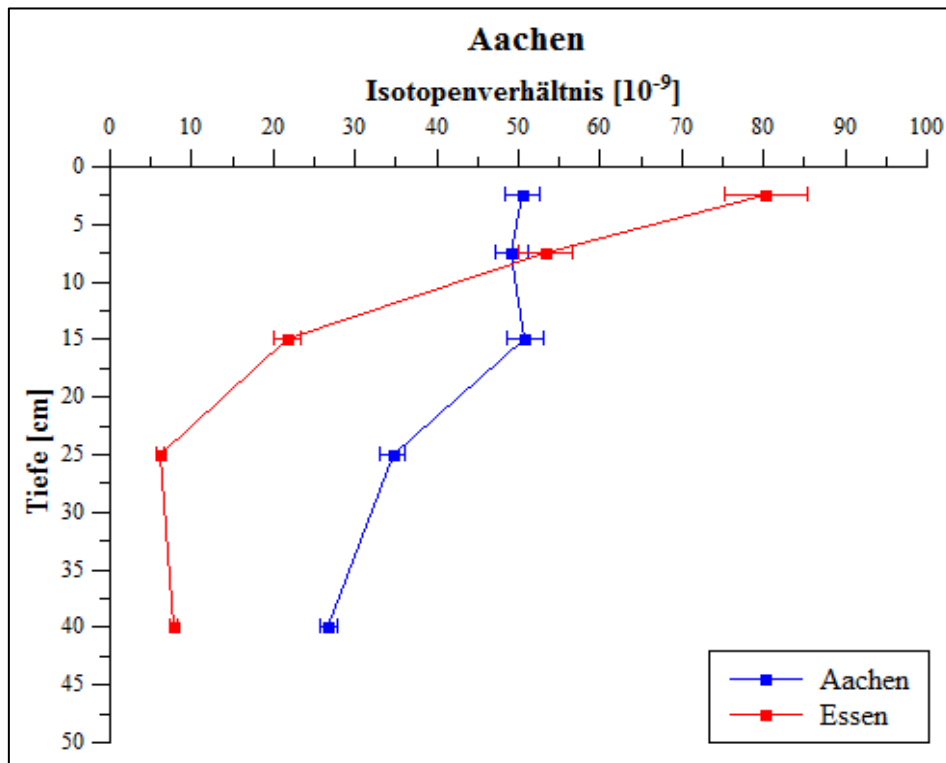


Abbildung 70: Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von der Tiefe für Bodenproben aus Aachen im Vergleich mit Essen

Die Isotopenverhältnisse in Aachen liegen zwischen  $26,8 - 50,8 \cdot 10^{-9}$ . In den oberen 20 cm sind sie nahezu konstant ( $49,1 - 50,8 \cdot 10^{-9}$ ). Danach erfolgt ein exponentieller Abfall in den unteren Schichten. Während der Wert in den oberen 5 cm ( $50,5 \cdot 10^{-9}$ ) deutlich kleiner ist als in Essen ( $80,3 \cdot 10^{-9}$ ) ist der Wert bei 10 - 20 cm deutlich größer ( $50,8 \cdot 10^{-9}$  im Vergleich zu  $21,7 \cdot 10^{-9}$ ). Dies ist ein deutlicher Hinweis, dass der Boden homogenisiert worden ist.

In den unteren Schichten wird das Isotopenverhältnis in Aachen deutlich kleiner ( $26,8 - 34,6 \cdot 10^{-9}$ ). Der Boden ist also nicht bis in 50 cm Tiefe bearbeitet worden. Die gefundenen Isotopenverhältnisse sind aber im Vergleich zu Essen deutlich erhöht. In Essen ergeben sich Werte zwischen  $6,1 - 7,8 \cdot 10^{-9}$ , also ca. viermal kleinere Werte. Es muss demnach mehr  $^{129}\text{I}$  in die unteren Bodenschichten verlagert worden sein.

An dem Bodenprofil aus Aachen lässt sich demnach deutlich der Einfluss der Bearbeitung erkennen, die etwa zwei Jahre vor der Probenahme stattgefunden hat. Eine ausführlichere Diskussion findet sich im Anhang 7.3

### 5.3.3 Korrelationen mit den Bodenparametern

Zusätzlich zu den Iodmessungen sind verschiedene bodenkundliche Parameter in den Proben analysiert worden. Es wurden der Gehalt an organischer Substanz (anhand des Gehalts an

organischem Kohlenstoff), verschiedene Oxide (Eisen, Aluminium und Mangan) und die Korngrößenverteilung sowie der pH-Wert bestimmt. In den folgenden Abschnitten werden die Ergebnisse die Messungen vorgestellt und mit den Iodwerten in Zusammenhang gebracht.

### 5.3.3.1 Organische Substanz

Gemäß der Literatur wird Iod über einen weiten pH-Bereich an organische Substanz gebunden. Das Iod kann dabei an Feststoffe gebunden sein oder als iod-organische Verbindung, fixiert an die Humin- und Fulvosäuren, in gelöster Form vorliegen [81].

In den untersuchten Bodenproben werden Gehalte an organischer Substanz zwischen 2,2 - 19,9 % in den oberen 5 cm und 0,2 - 3,9 % in 30 - 50 cm Tiefe gefunden. Dafür ist der Gehalt an organischem Kohlenstoff (TOC) bestimmt worden und daraus der Anteil an organischer Substanz im trockenen Boden. Der Gehalt an organischer Substanz nimmt in der Regel mit der Tiefe ab (Abbildung 71).

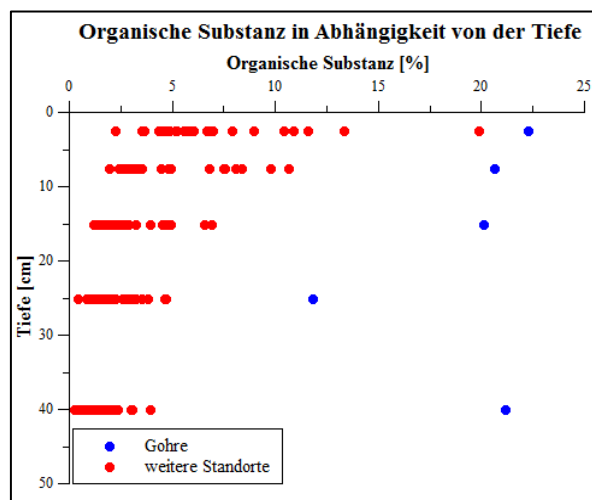


Abbildung 71: Gehalt an organischer Substanz in Abhängigkeit von der Tiefe

Die Werte aus Gohre (11,8 - 22,3 %) werden gesondert betrachtet, da es sich um einen anmoorigen sandigen Lehmboden (Gehalt an organischer Substanz zwischen 15 - 30 %) handelt [82]. In Nordenham (19,9 % organische Substanz im Oberboden) handelt es sich um eine knickige Brackmarsch aus schluffigem Ton. Die Marsch ist vermutlich aus tonreichem Schlick gebildet worden. Die abgelagerten Sedimente sind dann auch reich an organischer Substanz (10 - 15 %) [69]. Wird der Gehalt an organischer Substanz mit den gefundenen Iodgehalten in den Proben verglichen ergeben sich unterschiedliche Trends für  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$ .

## Ergebnisse und Diskussion

Die Auftragung der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit von der organischen Substanz ist in Abbildung 72 dargestellt.

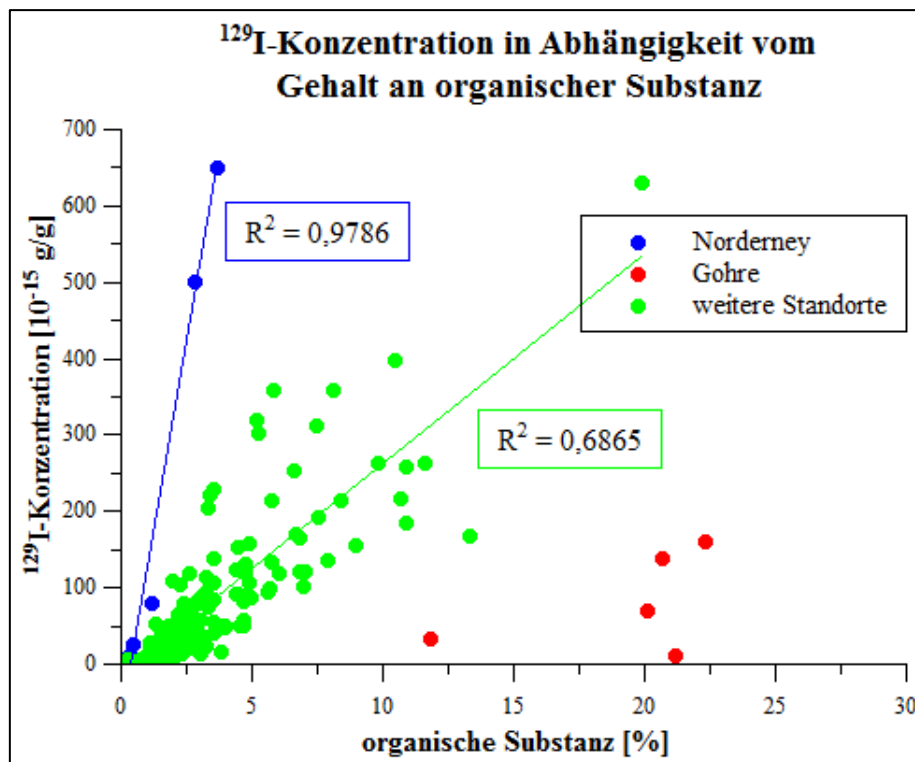


Abbildung 72:  $^{129}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an organischer Substanz

Zwischen dem Gehalt an organischer Substanz und der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration im Boden ergibt sich eine lineare Korrelation ( $R^2 = 0,6865$ ) wenn alle untersuchten Schichten gemeinsam betrachtet werden. Auch bei der Betrachtung der einzelnen Schichten finden sich Korrelationen. Sie werden jedoch mit der Tiefe schlechter (siehe auch Abbildung 112 im Anhang). Die Proben aus Norderney werden separat betrachtet, da aufgrund der Nähe zur Nordsee vergleichsweise hohe  $^{129}\text{I}$ -Gehalte und wegen des Sandbodens zusätzlich verhältnismäßig niedrige Gehalte an organischer Substanz im Boden gefunden worden sind. Sie zeigen eine lineare Korrelation ( $R^2 = 0,9786$ ).

Im Gegensatz dazu werden im Boden aus Gohre sehr hohe Gehalte an organischer Substanz gefunden. Hier nimmt der Gehalt nicht mit der Tiefe ab. Demzufolge ergibt sich kein Zusammenhang zur gemessenen  $^{129}\text{I}$ -Konzentration. Da in Geesthacht unerwartet niedrige  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Gehalte gefunden worden sind, werden jeweils kurz die Bodenparameter betrachtet. Der Gehalt an organischer Substanz liegt zwischen 0,6 - 3,5 %. Er ist damit vergleichsweise eher niedrig. Vermutlich wird ein Teil des atmosphärisch eingetragenen  $^{129}\text{I}$  schnell wieder ausgewaschen, da es im Boden nicht festgehalten werden kann.

## Ergebnisse und Diskussion

Beim  $^{127}\text{I}$  ergibt sich ein anderes Bild für die Korrelation mit der organischen Substanz. Da hier der Gehalt mit der Tiefe nahezu konstant ist (Vgl. Abbildung 58 - Abbildung 61), wird keine gute Korrelation mit der organischen Substanz vermutet. Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen in Abhängigkeit vom Gehalt an organischer Substanz (in %) sind in Abbildung 73 dargestellt. Wie schon bei der Darstellung der  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen (Abbildung 72) werden die Daten von Norderney und aus Gohre separat betrachtet.

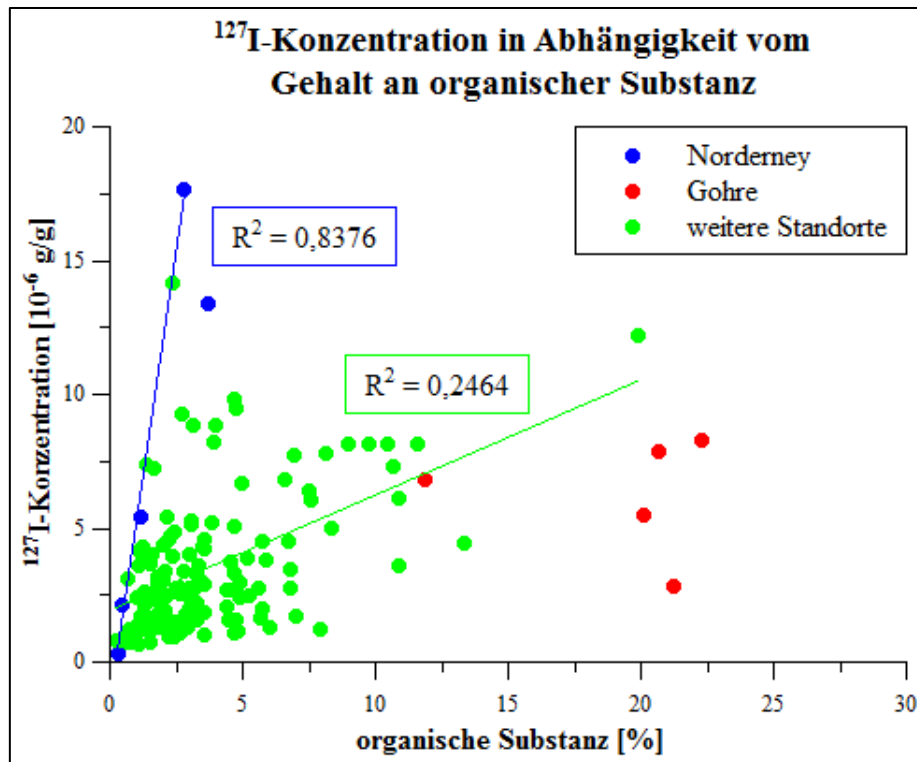


Abbildung 73:  $^{127}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an organischer Substanz

Im Gegensatz zum  $^{129}\text{I}$  ergibt sich beim  $^{127}\text{I}$  nur eine schwache Korrelation ( $R^2 = 0,2464$ ) zwischen dem Gehalt an organischer Substanz und den  $^{127}\text{I}$ -gehalten. Dafür gibt es zwei Erklärungen. Zum einen ist das  $^{127}\text{I}$  im Gleichgewichtszustand, d.h. es hat sich gleichmäßig in der Tiefe verteilt und zum anderen kann das  $^{127}\text{I}$  sich auch an andere Bodenbestandteile, hauptsächlich Aluminium- und Eisenoxide, binden.

Auf Norderney lässt sich eine deutlich bessere Korrelation zwischen  $^{127}\text{I}$  und dem Gehalt an organischer Substanz finden ( $R^2 = 0,8376$ ). Das liegt daran, dass Norderney eine Nordseeinsel ist und die beprobte Fläche auf einer Dünenaufschüttung lag, die fast nur aus Sand bestand. Es wird dort ständig frisches  $^{127}\text{I}$  eingetragen, welches sich ebenfalls an die organische Substanz bindet. Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentration nimmt dort im Gegensatz zu den anderen Stationen mit der Tiefe stark ab, da der Boden nur sehr wenige Oxide enthält und die große Menge an

eingetragenem Iod nicht gebunden werden kann. In Gohre finden sich aufgrund des anmoorigen Bodens sehr hohe Mengen an organischer Substanz, die mit der Tiefe relativ konstant ist. Stattdessen sinkt der Gehalt an stabilem Iod mit der Tiefe stark ab, sodass sich kein linearer Zusammenhang zwischen der  $^{127}\text{I}$ -Konzentration und der organischen Substanz ergibt. Es sind in den oberen Schichten mehr Bindungsplätze an organischer Substanz vorhanden als Iod das gebunden werden kann. So wird nur wenig Iod in tiefere Schichten transportiert.

Whitehead hat in verschiedenen Studien in Böden aus Großbritannien ebenfalls positive Korrelationen zwischen dem Gehalt an organischer Substanz und dem Gehalt an stabilem Iod gefunden [65, 67]. Er stellt jedoch fest, dass das Iod besser mit den Aluminium- und Eisenoxiden korreliert ist. Vergleichbare Resultate hat Sheppard durch fraktioniertes Extrahieren verschiedener Böden gefunden [83]. Das meiste Iod befindet sich bei Sheppard in der oxidischen Fraktion und nur wenig in der organischen. Hansen hat eine Studie über  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in verschiedenen Extraktionsfraktionen durchgeführt. Sie hat dabei prozentual mehr  $^{129}\text{I}$  gebunden an organischer Materie gefunden als  $^{127}\text{I}$  [36]. Dies spricht auch dafür, dass das  $^{129}\text{I}$  besser mit der organischen Substanz korreliert als das  $^{127}\text{I}$ . In Bodenproben die durch Tschernobyl kontaminiert worden sind, hat Hou  $^{129}\text{I}$  mittels fraktionierter Extraktion untersucht [84]. Er findet dabei das meiste  $^{129}\text{I}$  an organische Substanz gebunden, gefolgt von der oxidischen Fraktion. Damit wird die gefundene gute Korrelation von  $^{129}\text{I}$  und dem Gehalt an organischer Substanz durch die Literatur bestätigt.

### 5.3.3.2 Oxide

In den entnommenen Bodenproben sind die Gehalte von Aluminium-, Eisen- und Manganoxiden bestimmt worden. Es ist dabei zwischen der amorphen (oxalatlöslichen) und der kristallinen (nur mit Dithionit extrahierbaren) Fraktion unterschieden worden [85]. In der Literatur sind unterschiedliche Reagenzien benutzt worden um den Gehalt an Oxiden bzw. den Anteil des Iods der an die Oxide gebunden ist zu bestimmen. Meistens ist jedoch nur der Gesamtgehalt der Oxide bestimmt worden. Bei der Extraktion mit Oxalat werden die schlecht kristallisierten Oxide durch Komplexbildung gelöst. Die kristallinen Oxide können dagegen nur unter Verwendung eines Reduktionsmittels, hier das Dithionit, extrahiert werden [86]. Für den Vergleich der Oxidgehalte mit den Iodkonzentrationen sind deshalb die durch Extraktion mit Dithionit ermittelten Gehalte verwendet worden.

Die Gehalte der Al-, Fe- und Mn-Oxide sind mit der Tiefe relative konstant. In Abbildung 74 und Abbildung 75 sind die gefundenen Gehalte des Aluminium- und des Eisenoxids gegen die

## Ergebnisse und Diskussion

Tiefe aufgetragen. Dabei zeigt sich, dass die Gehalte in den verschiedenen Böden sehr unterschiedlich sind, jedoch keine Veränderungen mit der Tiefe auftreten.

Die Gehalte an  $\text{Al}_2\text{O}_3$  liegen in der oberen Schicht (0 - 5 cm) zwischen 0,2 - 4,1 g/kg und in der untersten Schicht (30 - 50 cm) zwischen 0,2 - 5,1 g/kg. Auf Norderney liegen die Werte noch niedriger (0,03 - 0,1 g/kg). Die Werte aus Gohre weichen nicht von den anderen Stationen ab (3,6 - 4,6 g/kg).

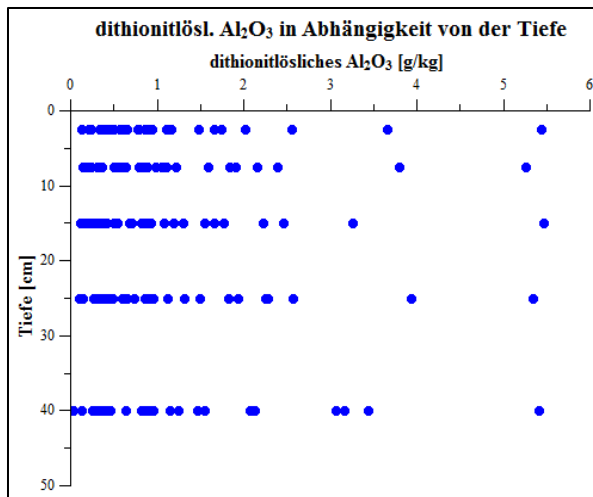


Abbildung 74: Gehalt an dithionitlöslichem  $\text{Al}_2\text{O}_3$  in Abhängigkeit von der Tiefe

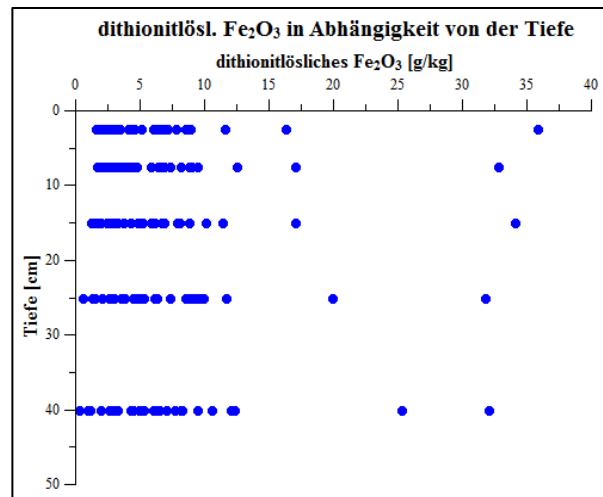


Abbildung 75: Gehalt an dithionitlöslichem  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  in Abhängigkeit von der Tiefe

In der oberen Schicht finden sich zwischen 1,8 - 26,1 g/kg dithionitlösliches  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , in der untersten Schicht zwischen 1 - 41 g/kg. Auf Norderney sind die Werte mit 0,2 - 1,6 g/kg wiederum niedriger. In Gohre liegen die Werte zwischen 1,8 - 3,3 g/kg.

Da  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  unterschiedliche Konzentrationsänderungen mit der Tiefe zeigen, werden sich nicht dieselben Korrelationen ergeben. Da in der Literatur beim  $\text{Al}_2\text{O}_3$  zumeist eine gute Korrelation mit Iod gefunden wurde, wird diese als erstes betrachtet. Anschließend folgt das Eisenoxid und da bei Manganoxid häufig keinerlei Zusammenhang mit dem Iodgehalt gefunden worden ist wird dieses nicht im Detail betrachtet.

In Abbildung 76 ist die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an dithionitlöslichem  $\text{Al}_2\text{O}_3$  aufgetragen. Abbildung 77 zeigt die  $^{127}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an dithionitlöslichem  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

## Ergebnisse und Diskussion

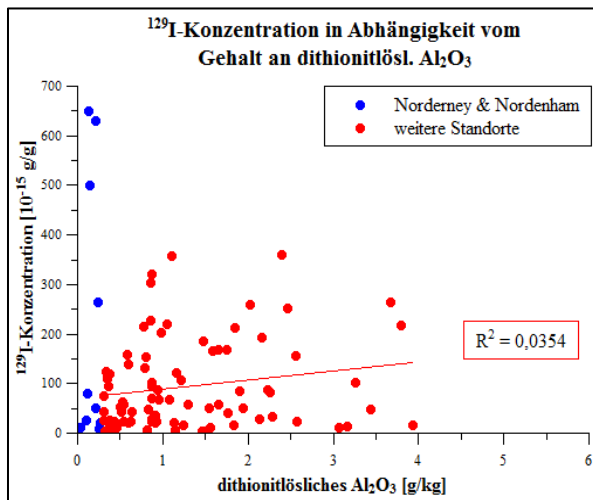


Abbildung 76:  $^{129}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an dithionitlöslichem  $\text{Al}_2\text{O}_3$

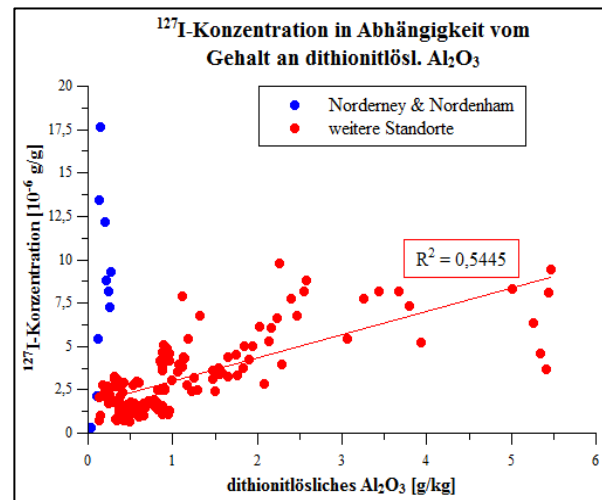


Abbildung 77:  $^{127}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an dithionitlöslichem  $\text{Al}_2\text{O}_3$

Zwischen dem Gehalt an  $^{129}\text{I}$  im Boden und der Menge an dithionitlöslichem  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ergibt sich keine Korrelation.  $^{129}\text{I}$  ist demnach in den untersuchten Böden kaum an  $\text{Al}_2\text{O}_3$  gebunden. Beim Vergleich zwischen  $^{127}\text{I}$  und dem dithionitlöslichen  $\text{Al}_2\text{O}_3$  lässt sich dagegen eine Korrelation ( $R^2 = 0,5445$ ) finden. Das  $^{127}\text{I}$  hat demnach genug Zeit sich an die Sorptionsplätze am  $\text{Al}_2\text{O}_3$  zu binden.

Auch beim dithionitlöslichen  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  wird ein Zusammenhang vor allem zum stabilen Iod erwartet. Wird die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an dithionitlöslichem  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  aufgetragen ergibt sich die in Abbildung 78 gezeigte Darstellung. Das Ergebnis für die Auftragung der  $^{127}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom dithionitlöslichen  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  ist in Abbildung 79 zu sehen:

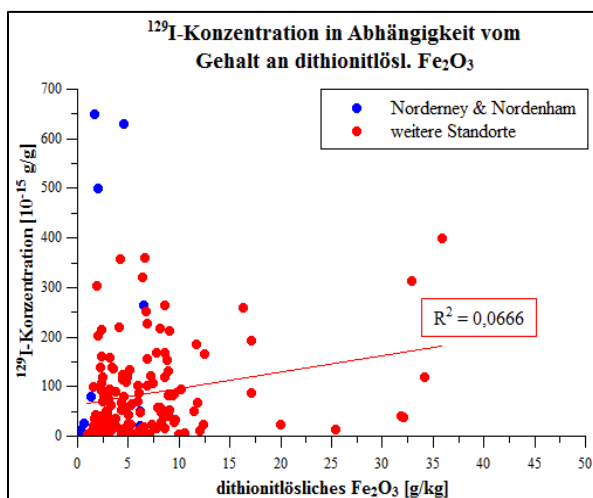


Abbildung 78:  $^{129}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an dithionitlöslichem  $\text{Fe}_2\text{O}_3$

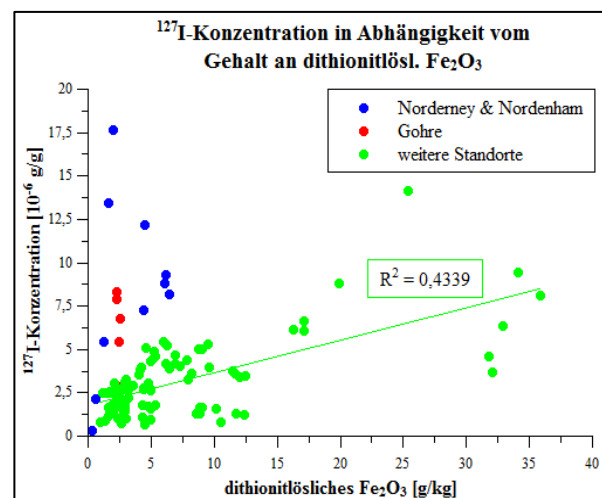


Abbildung 79:  $^{127}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an dithionitlöslichem  $\text{Fe}_2\text{O}_3$

Wie bereits bei der Auftragung des dithionitlöslichen  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ergibt sich auch beim dithionitlöslichen  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  keine Korrelation zur  $^{129}\text{I}$ -Konzentration. Das  $^{129}\text{I}$  in den untersuchten Böden ist daher auch nicht in signifikanten Mengen an das  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  im Boden gebunden.

Für das  $^{127}\text{I}$  lässt sich auch beim dithionitlöslichen  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  eine schwache Korrelation feststellen ( $R^2 = 0,4339$ ).

Da beim  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  eine schwächere Korrelation gefunden worden ist, sieht es so aus als würde sich das Iod besser an das  $\text{Al}_2\text{O}_3$  binden, als an das  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .

In Geesthacht finden sich sowohl beim Aluminium- (0,4 g/kg) als auch beim Eisenoxid (2,5 g/kg) vergleichsweise niedrige Werte. Es wird demnach nur wenig Iod an die Oxide absorbiert werden. Möglicherweise lässt sich dadurch der niedrige Iodgehalt im Boden aus Geesthacht erklären.

Weder das  $^{129}\text{I}$  noch das  $^{127}\text{I}$  zeigen eine Korrelation mit dem Gehalt an dithionitlöslichem  $\text{MnO}_2$ . In den untersuchten Böden werden auch nur sehr geringe Mengen an dithionitlöslichem  $\text{MnO}_2$  gefunden. Laut Literatur sind Manganoxide jedoch in den meisten Böden auch nur in sehr geringen Mengen enthalten. Sie binden hauptsächlich Schwermetalle und können als Oxidationsmittel wirken [87]. Da Manganoxide bereits bei sehr niedrigen pH-Werten negativ geladen sind sorbieren sie hauptsächlich Kationen wie z.B. Kobalt und Blei [88]. Möglicherweise oxidiert  $\text{MnO}_2$  auch Iodid zu elementarem Iod im Bodenwasser [89]. In Laborversuchen ist die Bildung von iod-organischen Verbindungen durch  $\text{MnO}_2$  gezeigt worden, es ist jedoch unklar, ob dieser Vorgang auch unter Umweltbedingungen stattfindet [90].

Whitehead hat in einer Studie über britische Böden ähnlich gute Korrelation zwischen stabilem Iod und Aluminium- bzw. Eisenoxiden gefunden [65]. Bei ihm ist jedoch die Korrelation zwischen Iod und Aluminium ( $R^2 = 0,88$ ) deutlich besser gewesen als die zwischen Eisen und Iod ( $R^2 = 0,64$ ). Auch er fand keinen Zusammenhang zwischen dem Gehalt von Manganoxiden und Iod [65].

### 5.3.3.3 Korngrößenverteilung

Die Korngrößenverteilung hat keinen direkten Einfluss auf die Sorption von Iod im Boden. Sie ist jedoch gemäß der Bodenkundlichen Kartieranleitung für den Feinboden (Korngröße  $< 2$  mm) zur Charakterisierung der Probenahmestandorte ermittelt worden [91].

Bei den meisten der untersuchten Böden handelt es sich um Lehm- und Sandböden, davon drei Böden aus reinem Sand (Bielefeld, Biendorf, Potsdam). Auch der Boden in Norderney besteht größtenteils aus Sand der in den oberen Schichten einen geringen Tonanteil aufweist.



Drei Böden bestanden hauptsächlich aus Schluff (Essen, Lahr, Puch) und zwei aus Ton (Nordenham, Stötten).

Neben anderen Parametern hat die Körnung Einfluss auf die Porengrößenverteilung und damit auf die Sickerwassergeschwindigkeit. In Sandböden versickern Niederschläge schnell, da sich dort viele Großporen ausbilden. Der Sand hat außerdem die kleinste spezifische Oberfläche ( $< 0,1 \text{ m}^2/\text{g}$ ). In Schluffböden liegt ein hoher Anteil an Mittelporen vor. Dort gibt es viel pflanzenverfügbares Wasser. Die spezifische Oberfläche von Partikeln der Schlufffraktion liegt zwischen  $0,1 - 1 \text{ m}^2/\text{g}$ . Im Tonboden gibt es besonders viele Feinporen, die Wasserbewegung ist langsam. Dort können große Mengen an Wasser festgehalten werden, die nicht pflanzenverfügbar sind. Allerdings neigen Tonböden zur Ausbildung sekundärer Grobporen. Trocknet der Tonboden aus, können sich Schrumpfrisse bilden. Diese können durch Material von der Oberfläche verfüllt werden, sodass ein Materialtransport in tiefere Schichten stattfindet. Tonminerale haben eine große spezifische Oberfläche ( $5 - 500 \text{ m}^2/\text{g}$ ) [69].

Die Korngrößenverteilung beeinflusst außerdem die Lagerungsdichte. Liegen viele große und kleine Körner nebeneinander vor, können sich hohe Lagerungsdichten ergeben, z.B. im Lehm bis zu  $2 \text{ g}/\text{m}^3$  [69].

Die Fähigkeit eines Bodens Ionen festzuhalten wird als Kationen- (KAK) bzw. Anionenaustauschkapazität (AAK) bezeichnet. Tonminerale haben eine negative Nettoladung und wirken deshalb als Kationenaustauscher. Sande und Schluffe sind ungeladen [69].

Da in den meisten Böden negative Ladungen (an Tonmineralen und organischer Substanz) überwiegen, ist die KAK meist deutlich höher als die AAK. Die variablen Ladungen an den Kanten der Tonminerale sind in bestimmten pH-Bereichen jedoch positiv, sodass sie als Anionenaustauscher wirken. Auch verschiedene Oxide, insbesondere Eisen und Aluminium, weisen pH-abhängige positive Ladungen auf. Huminstoffe sind insgesamt immer negativ geladen, aber auch an ihnen finden sich positive Teilladungen, z.B. durch Aminogruppen, die zur Anionensorption beitragen [69].

### 5.3.3.4 pH-Wert

In den untersuchten Böden sind auch die pH-Werte bestimmt worden. Sie liegen alle im Bereich von stark sauer (pH 4,0 - 4,9) bis schwach alkalisch (pH 7,1 - 8,0). Es gibt jedoch nur zwei Böden die über die gesamte Tiefe alkalisch sind (Ludwigshöhe und Gohre) [69].

Da sich viele der Böden in landwirtschaftlicher Nutzung befinden, muss davon ausgegangen werden, dass der gemessene pH-Wert nicht unbedingt dem natürlichen entspricht, da die Böden gekalkt worden sein können. Dies führt zu einer Erhöhung des pH-Wertes.

Die Aluminium- und Eisenoxide im Boden sind im sauren pH-Bereich positiv geladen und können unter diesen Bedingungen Iod adsorbieren. Im neutralen bis leicht alkalischen Bereich weisen sie dagegen kaum Oberflächenladung auf, sodass sie nur wenig Ionen sorbieren [69].

In den meisten der untersuchten Böden sollte demnach eine Adsorption des Iods an die Oxide möglich sein.

### 5.4 Oberflächenwasser

Die Oberflächenwasserproben sind von der BfG zur Verfügung gestellt worden. Es sind dafür, wie in Abschnitt 4.1 beschrieben, 15 Probenahmestellen an den großen deutschen Wasserstraßen (Donau, Elbe, Ems, Oder, Rhein und Weser) ausgewählt worden. Von dem an diesen Probenahmestellen gesammelten Wasser wurden monatlich Proben für das IRS abgefüllt, welche aufgrund der geringen Variation in den Werten zu Quartalsproben zusammengefasst worden sind. In den folgenden Darstellungen wird jeder Fluss einzeln betrachtet um den Verlauf von der Quelle zur Mündung besser beobachten zu können.

In Abbildung 80 - Abbildung 85 sind die Ergebnisse der  $^{129}\text{I}$ -Messungen gezeigt. Dabei ist zu beachten, dass nur die jeweils nebeneinander stehenden Diagramme dieselbe Skalierung (Elbe und Ems  $0 - 90 \cdot 10^{-17} \text{ g/g}$ , Weser und Rhein  $0 - 70 \cdot 10^{-17} \text{ g/g}$  und Oder und Donau  $0 - 14 \cdot 10^{-17} \text{ g/g}$ ) besitzen.

Die gefundenen  $^{129}\text{I}$ -Gehalte liegen zwischen  $1,9 - 81,1 \cdot 10^{-17} \text{ g/g}$ . Die höchste  $^{129}\text{I}$ -Konzentration wird in Geesthacht (Elbe) gefunden, die niedrigste in Regensburg (Donau). Im Mittel reichten die Werte von  $3,1 - 22,5 \cdot 10^{-17} \text{ g/g}$ . Der höchste Durchschnittswert findet sich in Geeste (Ems,  $22,5 \cdot 10^{-17} \text{ g/g}$ ), der niedrigste Durchschnittswert in Regensburg (Donau,  $3,1 \cdot 10^{-17} \text{ g/g}$ ). Die Donau weist insgesamt die niedrigsten Werte auf. Die höchsten Werte sind an der Ems (mit Geeste als einziger Messstation) und an der Elbe (in Geesthacht) zu finden. Auch hier scheint die Entfernung der Probenahmestelle zur Nordseeküste eine gewisse Rolle zu spielen. Eine Erklärung für die in Einzelfällen deutlich erhöhten Werte in Geesthacht (Elbe) und Höxter (Weser) könnten auch die in der Nähe liegenden Kernkraftwerke Krümel und Würgassen sein, falls dort  $^{129}\text{I}$  in die Umwelt freigesetzt worden ist.

## Ergebnisse und Diskussion

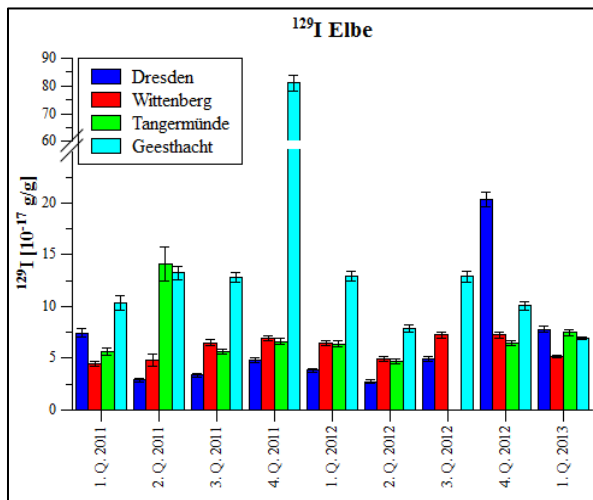


Abbildung 80:  $^{129}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Elbe

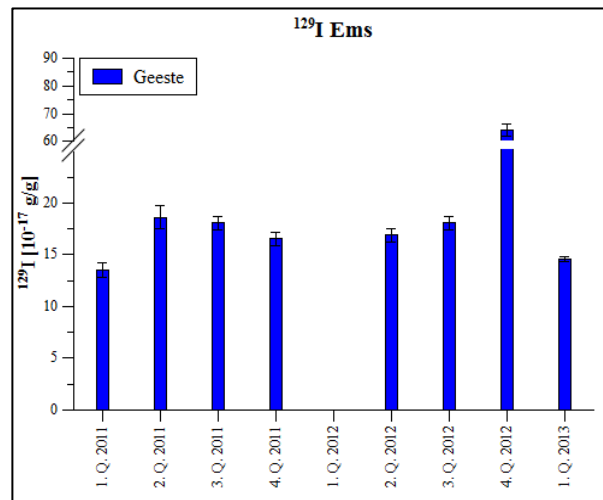


Abbildung 81:  $^{129}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Ems

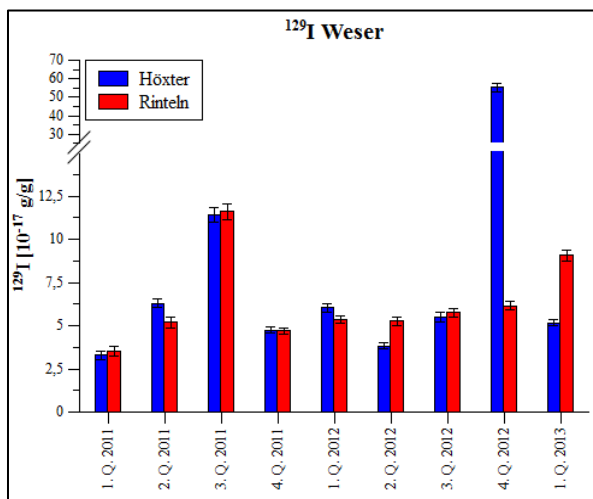


Abbildung 82:  $^{129}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Weser

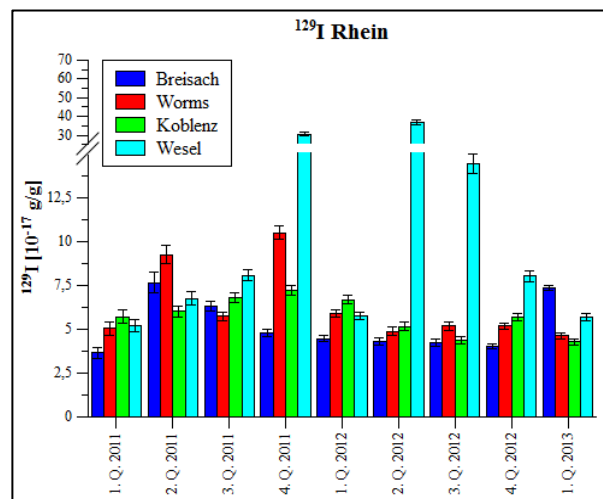


Abbildung 83:  $^{129}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben des Rheins

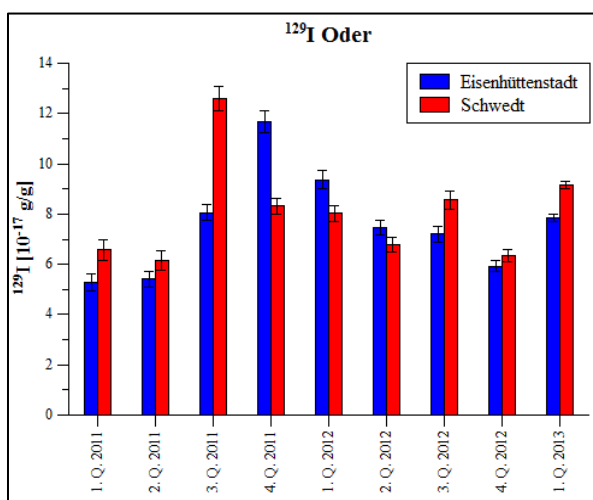


Abbildung 84:  $^{129}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Oder

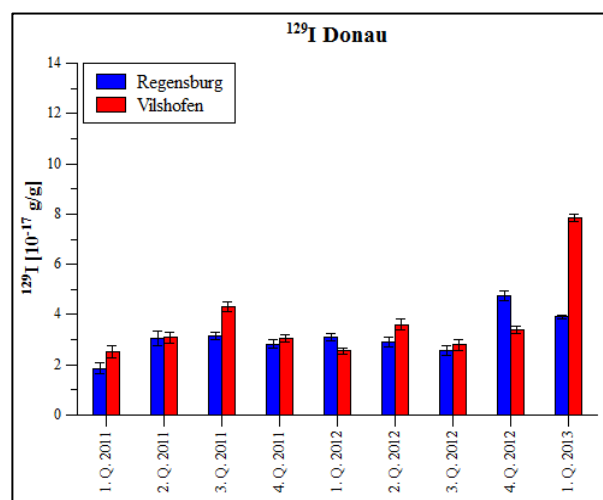


Abbildung 85:  $^{129}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Donau

## Ergebnisse und Diskussion

Daraoui gibt in seiner Dissertation  $^{129}\text{I}$ -Gehalte für Oberflächenwässer in Niedersachsen mit  $4,3 - 16 \cdot 10^{-17} \text{ g/g}$  an [3]. Die Werte stimmen gut mit den gemessenen Quartalsmittelwerten überein. Sie scheinen in den letzten 15 Jahren relativ konstant zu sein.

Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentration ist bei den meisten Flüssen über den gesamten untersuchten Abschnitt relativ konstant. Zwischen den Flüssen ergeben sich jedoch erhebliche Unterschiede. Die Ergebnisse sind in Abbildung 86 - Abbildung 91 dargestellt. Zur besseren Vergleichbarkeit sind alle Diagramme mit derselben Skala aufgetragen.

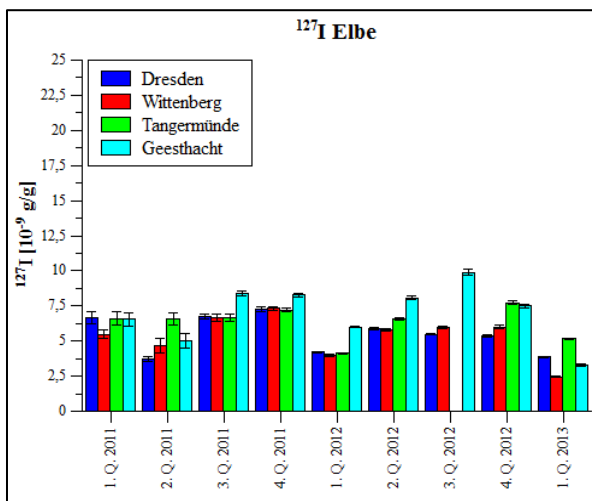


Abbildung 86:  $^{127}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Elbe

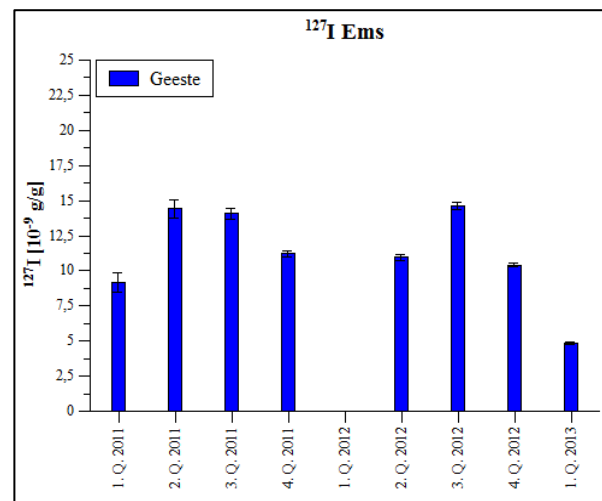


Abbildung 87:  $^{127}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Ems

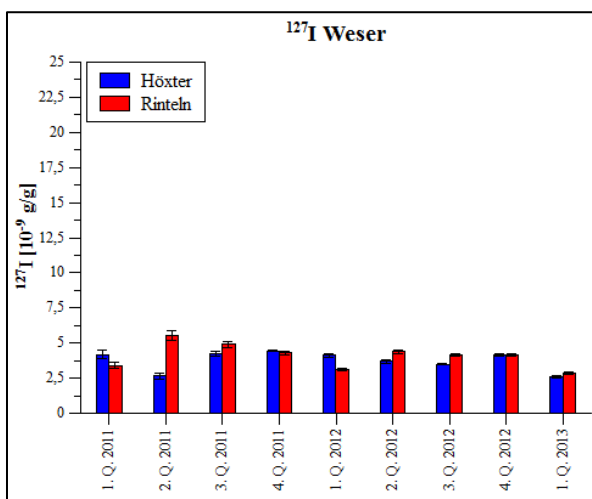


Abbildung 88:  $^{127}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Weser

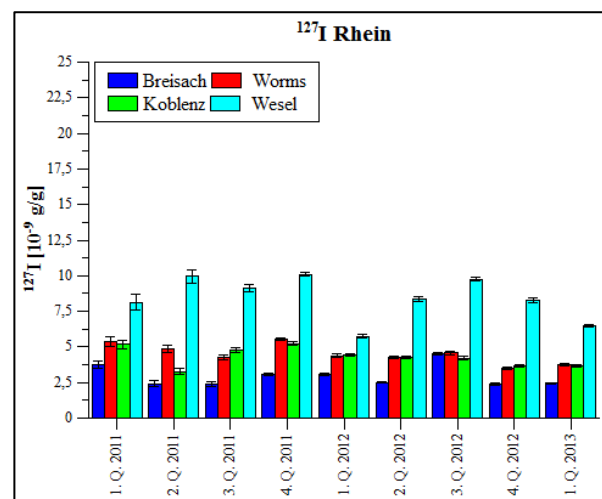


Abbildung 89:  $^{127}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben des Rheins

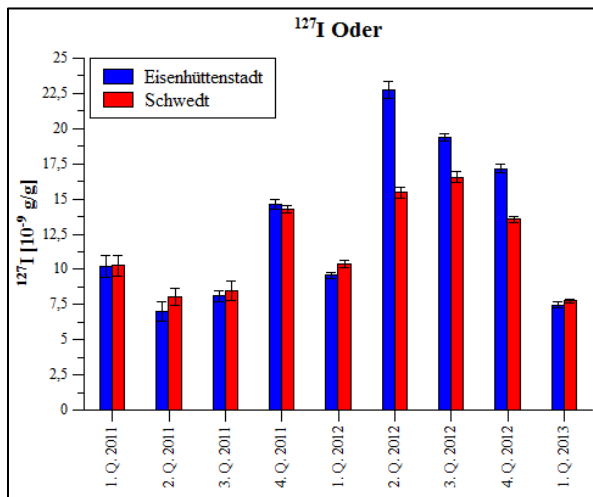


Abbildung 90:  $^{127}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Oder

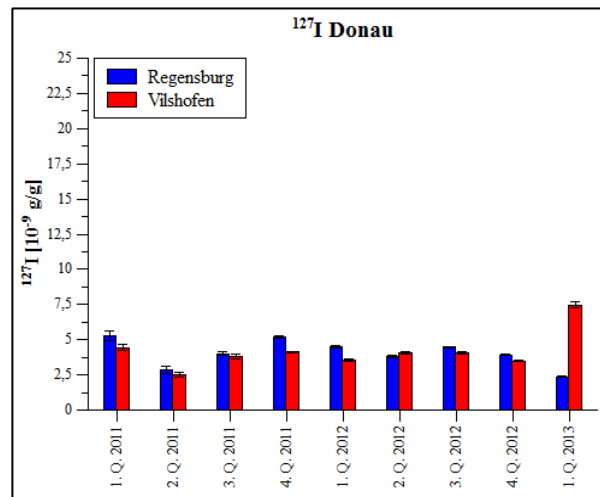


Abbildung 91:  $^{127}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Donau

Die gemessenen  $^{127}\text{I}$ -Werte reichen von  $2,4 - 22,8 \cdot 10^{-9}$  g/g. In Eisenhüttenstadt wird der höchste Wert ( $22,8 \cdot 10^{-9}$  g/g) gefunden, in Regensburg (Donau) und Breisach (Rhein) die niedrigsten Werte ( $2,4 \cdot 10^{-9}$  g/g).

Auch bei den Durchschnittswerten liefert Eisenhüttenstadt (Oder) den höchsten Wert ( $12,9 \cdot 10^{-9}$  g/g) gefolgt von Schwedt ( $11,6 \cdot 10^{-9}$  g/g, Oder) und Geeste ( $11,2 \cdot 10^{-9}$  g/g, Ems). Die anderen Flüsse weisen deutlich niedrigere  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen im Wasser auf. Der geringste durchschnittliche Gehalt an  $^{127}\text{I}$  findet sich in Breisach (Rhein) mit  $3,0 \cdot 10^{-9}$  g/g. Auch Weser (Höxter  $3,7 \cdot 10^{-9}$  g/g und Rinteln  $4,1 \cdot 10^{-9}$  g/g) und Donau (Regensburg  $4,0 \cdot 10^{-9}$  g/g und Vilshofen  $4,2 \cdot 10^{-9}$  g/g) liegen in einem ähnlichen Bereich.

Beim Rhein fällt außerdem auf, dass die Werte aus Wesel fast immer deutlich höher sind als die weiter flussaufwärts liegenden Stationen. Außerdem weist Breisach, welches am nächsten zur Quelle gelegen ist, in der Regel auch niedrigere Werte auf als Worms und Koblenz. Die Unterschiede in den Konzentrationen an den Probenahmestellen des Rheins lassen sich durch die vielen Industriestandorte entlang des Flusslaufes erklären. Diese stellen zusätzliche Quellen für  $^{127}\text{I}$  dar, was einen Anstieg der Gehalte zur Folge hat. Im Gegensatz zum  $^{129}\text{I}$  lässt sich jedoch keinerlei Abhängigkeit mit der Entfernung zur Nordsee feststellen. Da das Iod im Flusswasser auch mehrere natürliche Quellen hat wie Niederschlag, Oberflächenablauf und Auswaschung aus dem Boden wird dies auch nicht erwartet.

In der Literatur wird für Flüsse außerhalb von menschlichem Einfluss  $3 \cdot 10^{-9}$  g/g und in der Nähe großer Städte  $15 - 20 \cdot 10^{-9}$  g/g angegeben [46]. Sowohl die in dieser Arbeit ermittelten Einzel- als auch die Durchschnittswerte liegen genau in diesem Bereich, wobei einige Flüsse (Donau, Weser, der Oberlauf des Rheins) eher im Bereich der unbeeinflussten Werte liegen und andere (Ems, Oder) deutlich einen anthropogenen Einfluss aufweisen. Daraoui gibt in

## Ergebnisse und Diskussion

seiner Dissertation  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen von  $7 \cdot 10^{-9} \text{ g/g}$  in Niedersächsischen Oberflächenwässern an, was gut mit den Werten der Elbe übereinstimmt [3].

Aus den gemessenen Daten für  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  sind wiederum Isotopenverhältnisse berechnet worden. In den folgenden Diagrammen (Abbildung 92 - Abbildung 97) sind die Ergebnisse der Isotopenverhältnisse dargestellt. Da sich dabei wiederum große Unterschiede zwischen den Flüssen ergeben haben, sind nur die nebeneinander stehenden Diagramme gleich skaliert. Die gefundenen Isotopenverhältnisse reichen von  $3,2 - 130,4 \cdot 10^{-9}$ . Der höchste Wert wird in Höxter (Weser,  $130,4 \cdot 10^{-9}$ ) gemessen. Der niedrigste Wert stammt aus Eisenhüttenstadt (Oder,  $3,2 \cdot 10^{-9}$ ) aufgrund der dort recht hohen  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen.

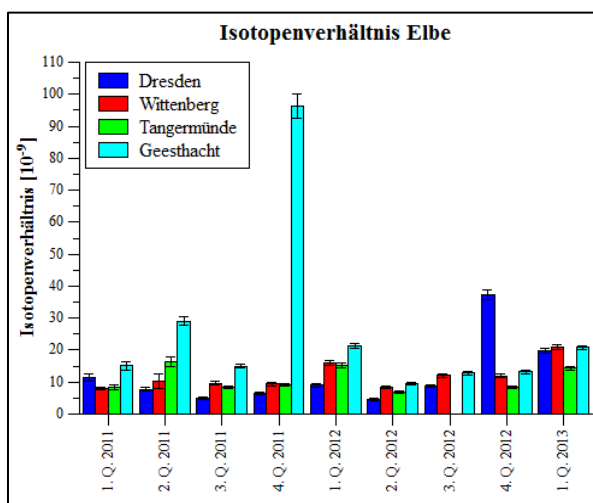


Abbildung 92: Ergebnisse der Isotopenverhältnisse der Flusswasserproben der Elbe

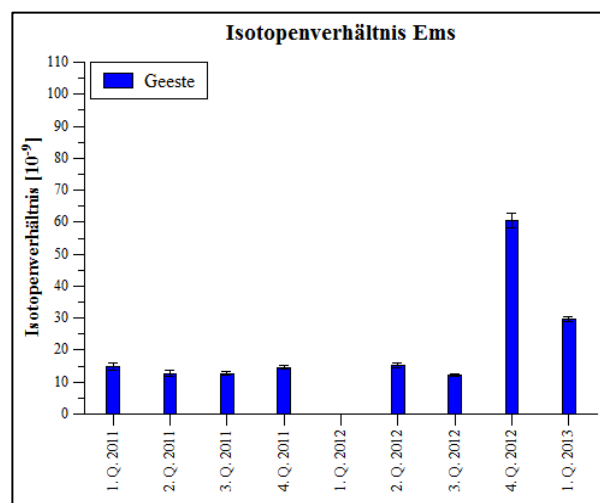


Abbildung 93: Ergebnisse der Isotopenverhältnisse der Flusswasserproben der Ems

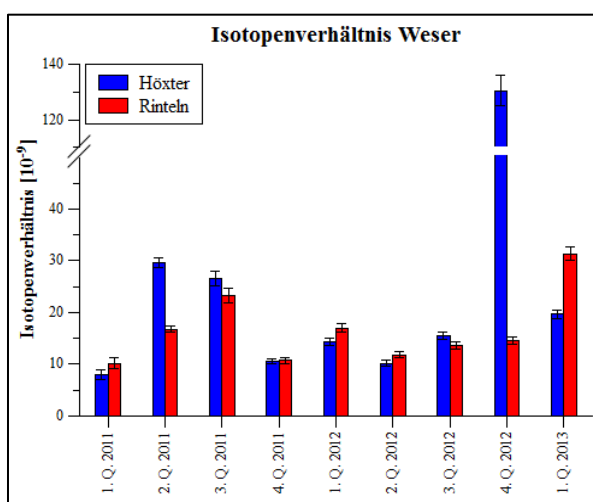


Abbildung 94: Ergebnisse der Isotopenverhältnisse der Flusswasserproben aus der Weser

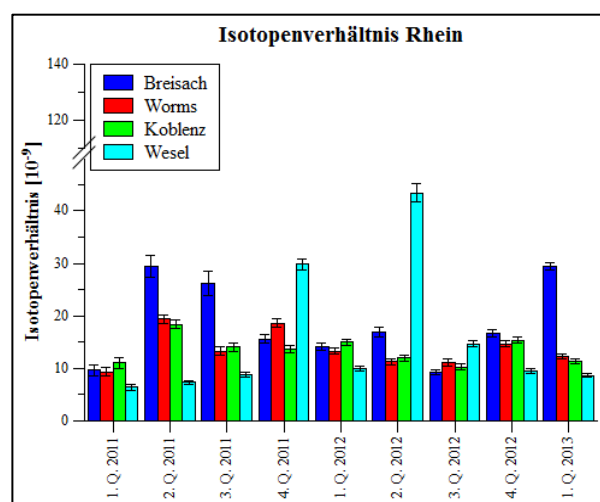


Abbildung 95: Ergebnisse der Isotopenverhältnisse der Flusswasserproben des Rheins

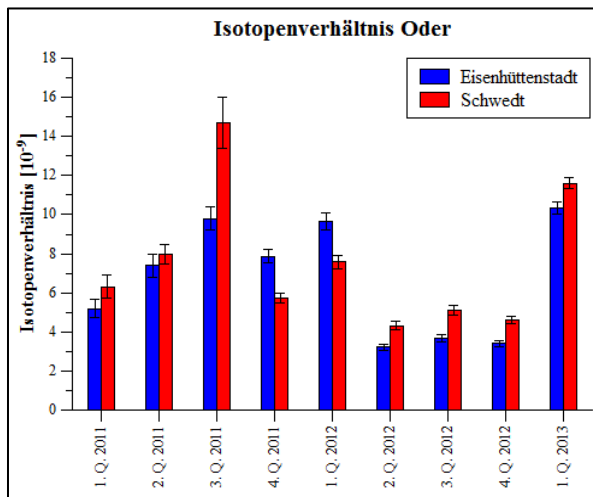


Abbildung 96: Ergebnisse der Isotopenverhältnisse der Flusswasserproben der Oder

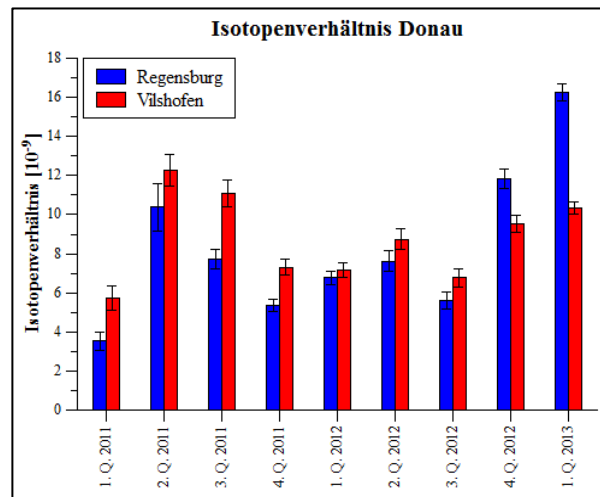


Abbildung 97: Ergebnisse der Isotopenverhältnisse der Flusswasserproben der Donau

Werden die Durchschnittswerte betrachtet, so findet sich hier der höchste Wert ebenfalls in Höxter ( $29,4 \cdot 10^{-9}$ ), was jedoch nur aufgrund des einen stark erhöhten  $^{129}\text{I}$ -Wertes der Fall ist (Abbildung 94). Wird dieses Quartal nicht berücksichtigt, liegt der Durchschnittswert für das Isotopenverhältnis in Höxter nur noch bei  $16,8 \cdot 10^{-9}$ . Eine mögliche Erklärung für den stark erhöhten Wert in Höxter könnte das 15 km flussaufwärts gelegene Kernkraftwerk Würgassen sein, welches sich jedoch seit 1997 im Rückbau befindet.

Der höchste Wert findet sich dann in Geesthacht ( $25,9 \cdot 10^{-9}$ ). Den niedrigsten Wert liefern durchschnittlich die Proben aus Eisenhüttenstadt (Oder,  $6,7 \cdot 10^{-9}$ ).

Die Flüsse mit den niedrigsten Isotopenverhältnissen sind wie schon beim  $^{129}\text{I}$  die Donau und die Oder. Die höchsten Isotopenverhältnisse finden sich in der Ems, der Weser und der Elbe bei Geesthacht. Sie werden hauptsächlich durch die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte beeinflusst.

Aufgrund der Literaturdaten sind in den Flusswasserproben Isotopenverhältnisse zwischen  $10^{-9}$  -  $10^{-7}$  erwartet worden. Die meisten Proben liegen im Bereich von  $10^{-9}$  -  $10^{-8}$ . Eine Probe hat ein Isotopenverhältnis von  $10^{-7}$  (Höxter, Weser, 4. Quartal 2012). Sie entsprechen also genau den Erwartungen.

Um die Entwicklung der Iodkonzentrationen entlang der Flussläufe besser nachvollziehen zu können werden die mittleren Gehalte der beiden Iodisotope entlang der Flussläufe dargestellt.

Abbildung 98 zeigt die mittleren  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen an den jeweiligen Messstationen in  $10^{-17}$  g/g. In Höxter ist der Wert für das 4. Quartal 2012 von der Mittelwertberechnung ausgeschlossen worden, da er im Vergleich zu den anderen Werten um ca. einen Faktor 10 höher ist. In Abbildung 99 sind die mittleren  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen in  $10^{-9}$  g/g entlang der Flussläufe gezeigt.

## Ergebnisse und Diskussion

Bei allen Flüssen zeigt sich eine Zunahme der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration von der Quelle zur Mündung. Dabei handelt es sich vermutlich um den Einfluss der anthropogen beeinflussten Zuläufe, wie Industrieabwässer und Kläranlagenabläufe. Dies entspricht bei fast allen untersuchten Flüssen, mit Ausnahme der Donau, einem Verlauf von Süden nach Norden. Es ist demnach auch eine Zunahme von Süden nach Norden zu beobachten. Eine Veränderung der Werte von Osten nach Westen, wie sie bei den Niederschlägen und Aerosolen beobachtet wird, lässt sich im Flusswasser nicht feststellen. Die Werte in der Oder (im Osten Deutschlands) sind tendenziell sogar höher als in der Weser, welche deutlich weiter im Westen liegt. Es lässt sich nicht eindeutig sagen, ob die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration im Flusswasser direkt von der Nordsee beeinflusst wird.

mittlere  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen

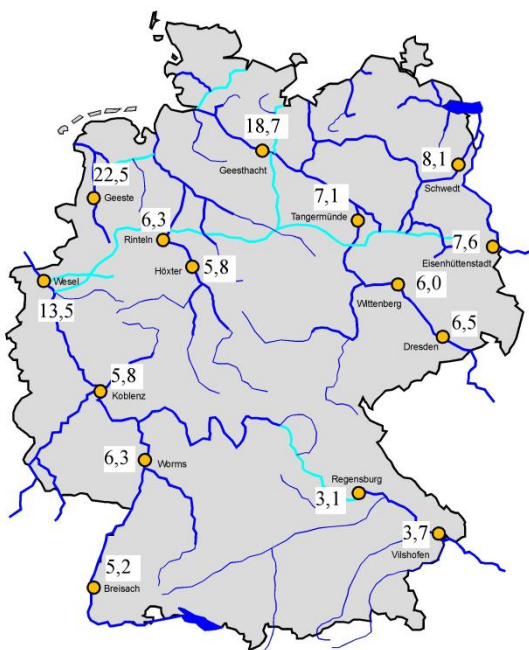


Abbildung 98: Mittlere  $^{129}\text{I}$ -Konzentration pro Quartal der Flusswasserproben in  $10^{-17}$  g/g

mittlere  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen

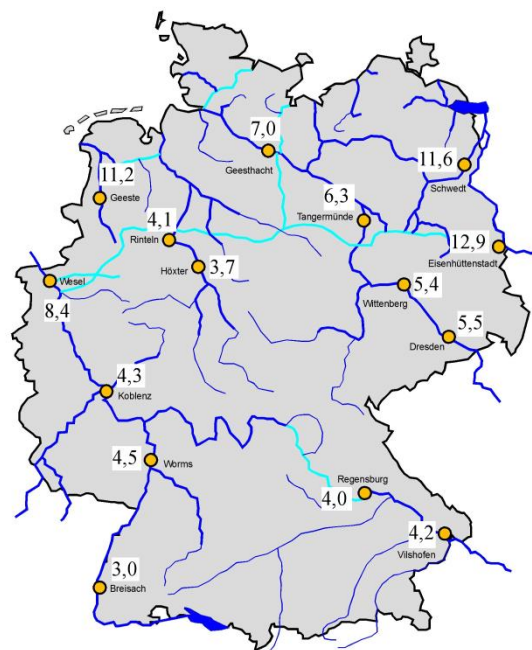


Abbildung 99: Mittlere  $^{127}\text{I}$ -Konzentration pro Quartal der Flusswasserproben in  $10^{-9}$  g/g

Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentration ist bei den meisten Flüssen, wie bereits erwähnt, über den gesamten Flusslauf relativ konstant. Es lassen sich weder Tendenzen von Süden nach Norden noch von Osten nach Westen ausmachen.

Lediglich der Rhein zeigt einen sprunghaften Anstieg von Worms ( $4,3 \cdot 10^{-9}$  g/g) nach Wesel ( $8,4 \cdot 10^{-9}$  g/g). Da bereits in den Niederschlägen aus Essen hohe  $^{127}\text{I}$ -Gehalte gefunden



## Ergebnisse und Diskussion

---

worden sind, sind vermutlich die gleichen Quellen (Kohleverbrennung in der Stahlindustrie) für die Erhöhung der  $^{127}\text{I}$ -Konzentration im Flusswasser verantwortlich.

Um den Austrag des Iods bilanzieren zu können, sind die Durchflussmengen an den Probenahmestellen vor der Mündung bzw. bevor der Fluss Deutschland verlässt betrachtet worden. Da der Rhein, die Elbe und die Oder nicht in Deutschland entspringen, ist bei ihnen auch der Eintrag aus dem Ausland erfasst und mit dem ermittelten Austrag verrechnet worden. Außerdem müssen die Einzugsgebiete der Flüsse betrachtet werden, da diese nicht das gesamte Bundesgebiet (nur ca. 90 %) abdecken. Abbildung 100 zeigt die Einzugsgebiete der großen deutschen Wasserstraßen sowie der Küstenbereiche von Nord- und Ostsee. Die Größe der jeweiligen Einzugsgebiete sowie die Durchflussmengen an den Messstationen finden sich im Anhang in Tabelle 21.

Die Abflüsse der kleineren Flüsse und im Bereich des Tideneinflusses können im Rahmen dieser Arbeit nicht berücksichtigt werden, sodass nur ein Minimalwert für den Austrag angegeben werden kann.

Anhand der mittleren  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen und der Durchflussmengen an den Sammelstellen lässt sich die jährliche Austragsmenge der Flüsse, bei Elbe, Oder und Rhein korrigiert um den Eintrag, berechnen. Diese wird anschließend auf die Größe des Einzugsgebietes bezogen. Dadurch ergibt sich ein durchschnittlicher jährlicher Gesamtaustrag (für die betrachteten Flüsse) für  $^{129}\text{I}$  von  $272,4 \cdot 10^{-12} \text{ g/m}^2$  und für  $^{127}\text{I}$  von  $23,7 \cdot 10^{-3} \text{ g/m}^2$ . Die Austragsraten der einzelnen Flüsse sind in Tabelle 9 aufgelistet. Ein Vergleich mit den Einträgen wird im nächsten Abschnitt diskutiert.

**Tabelle 9: Jährliche Austragsraten aus den Einzugsgebieten der großen deutschen Wasserstraßen für  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$**

Fluss	$^{129}\text{I}$ Austrag in $10^{-12} \text{ g/m}^2/\text{a}$	$^{127}\text{I}$ Austrag in $10^{-3} \text{ g/m}^2/\text{a}$
Donau	12,2	1,4
Elbe	39,5	1,2
Ems	17,9	0,9
Oder	128,9	15,5
Rhein	68,2	4,4
Weser	5,8	0,4

Die hohen Werte für die Oder lassen sich dadurch erklären, dass ein Teil ihres Einzugsgebietes nicht in Deutschland liegt. Sie bildet die Grenze zu Polen, von wo ebenfalls Iod in

den Fluss eingetragen wird. Die Austragsmenge wird also vermutlich überschätzt, da nur das Einzugsgebiet in Deutschland betrachtet worden ist.



Abbildung 100: Einzugsgebiete der Flüsse [92]

## 5.5 Vergleich der Kompartimente

In diesem Abschnitt werden die verschiedenen Kompartimente miteinander verglichen. Da nicht an allen Standorten jede Probenart gesammelt worden ist, ist dies nur für einzelne Standorte möglich. Es werden Niederschlag und Aerosol sowie Niederschlag, Aerosol, Boden und Fließgewässer miteinander verglichen. Am Ende werden die berechneten Isotopenverhältnisse zusammen mit den  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen betrachtet.

### 5.5.1 Niederschlag und Aerosol

Das  $^{129}\text{I}$  aus der Atmosphäre wird durch Niederschläge und Aerosole deponiert. In Abbildung 101 werden die mittleren jährlichen  $^{129}\text{I}$ -Depositionen durch Niederschlag und Aerosole miteinander verglichen. Dabei ist zu beachten, dass nur das partikelgebundene Iod in den Aerosolen erfasst worden ist.

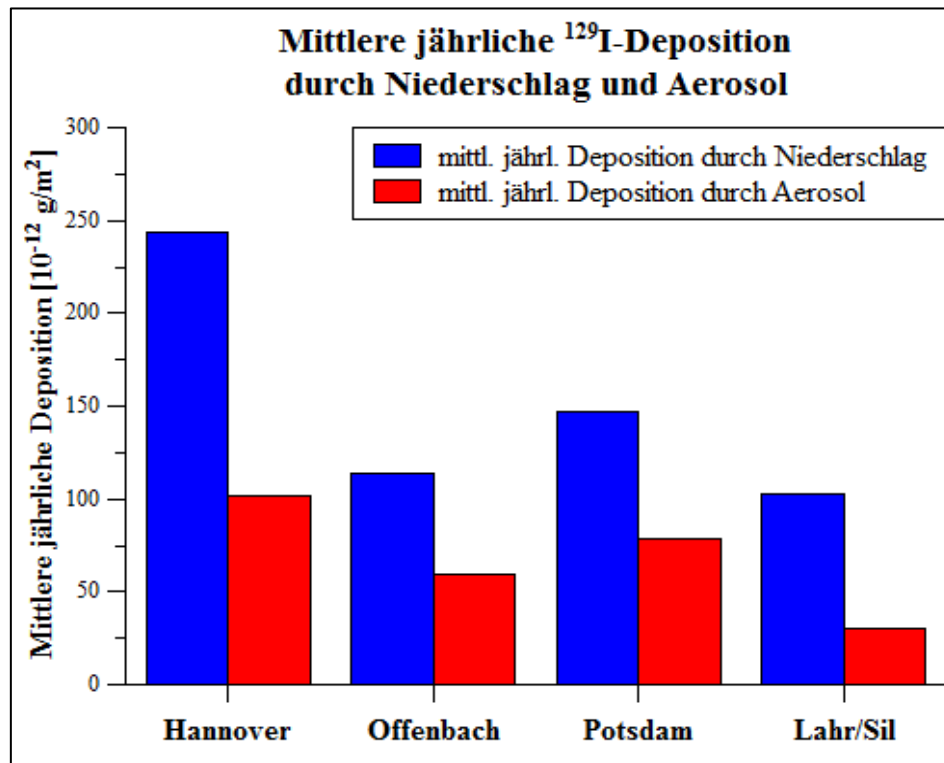


Abbildung 101: Vergleich der mittleren jährlichen <sup>129</sup>I-Deposition durch Niederschlag (blau) und Aerosol (rot) in 10<sup>-12</sup> g/m<sup>2</sup>, Sil = Schauinsland

Für alle Stationen dominiert deutlich der Niederschlag im Vergleich zu den gesammelten Aerosolfraktionen als Quelle für das deponierte <sup>129</sup>I. Ein Grund dafür ist die effektivere Auswaschung von Iod durch den Niederschlag aus der Atmosphäre. Die nasse Deposition wird durch die Aufnahme von Iod in Regen und Schnee, sowohl in den Wolken, als auch während des Niederschlags bestimmt. Dabei wird sowohl partikel-gebundenes Iod als auch gasförmiges elementares Iod leicht deponiert, während Methyljodid kaum ausgewaschen wird. Die Deposition anderer gasförmiger Iodspezies hängt von ihrer chemischen Reaktivität ab [46]. Die trockene Deposition ist dagegen von der gravitationsbedingten Absetzung, der Windstärke bzw. dem Transport durch Turbulenzen sowie von molekularer Diffusion abhängig. Auch die chemische Form spielt wiederum eine Rolle. Zusätzlich wird die trockene Deposition von der Art und Dichte der Vegetation beeinflusst. Bei der Deposition von partikel-gebundenem Iod wird die Depositionsgeschwindigkeit hauptsächlich durch die Partikelgröße, die Windgeschwindigkeit und Turbulenzen beeinflusst [46]. Es werden demnach bei der nassen Deposition auch Bestandteile der trockenen Deposition (Partikel und gasförmige Iodspezies) mit ausgewaschen [74]. López-Gutiérrez kommt bei Untersuchungen von nasser und trockener Deposition in Sevilla (Spanien) ebenfalls zu dem Ergebnis, dass die nasse Deposition dominiert [22]. Er stellt zudem fest, dass hauptsächlich partikel-gebundenes Iod ausgewaschen wird. Auch England hat beim Vergleich von nasser und trockener

Deposition in Schweden die nasse Deposition als dominierend festgestellt [29]. Whitehead hat anhand von durchschnittlichen Konzentrationen und Niederschlagsmengen bzw. Depositionsgeschwindigkeiten die jährliche nasse und trockene Deposition von stabilem Iod abgeschätzt. Auch er kommt zu dem Schluss, dass durch die nasse Deposition mehr Iod eingetragen wird als durch die trockene [46].

Die Isotopenverhältnisse (Abbildung 102) sind im Niederschlag ebenfalls höher als in Aerosolen. Da sich die Konzentrationen nicht direkt vergleichen lassen (g/g beim Niederschlag und g/m<sup>3</sup> beim Aerosol) lässt sich nicht eindeutig feststellen, ob das höhere Isotopenverhältnis im Niederschlag durch einen höheren Gehalt an <sup>129</sup>I verursacht wird oder einen niedrigeren <sup>127</sup>I-Gehalt. Aufgrund der höheren Depositionsrate durch Niederschläge lässt sich jedoch eine höhere <sup>129</sup>I-Konzentration im Niederschlag vermuten.

Englund hat bei seinen Messungen von Aerosolen und Niederschlägen aus Schweden ebenfalls die höheren Isotopenverhältnisse im Niederschlag gefunden [29]. Dadurch werden die Ergebnisse aus der vorliegenden Arbeit bestätigt.

Auch die Übersicht über die Literaturdaten (Tabelle 1) zeigt, dass die Isotopenverhältnisse im Niederschlag tendenziell etwas höher sind als in Aerosolen.

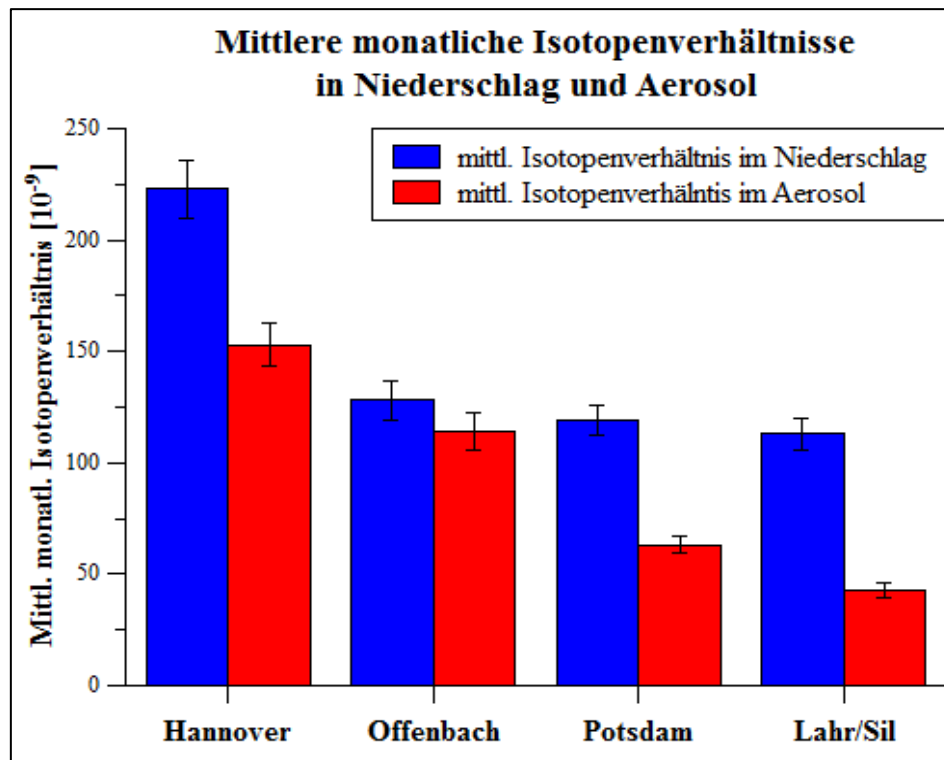


Abbildung 102: Vergleich der mittleren monatlichen Isotopenverhältnisse im Niederschlag (blau) und den Aerosolen (rot) in 10<sup>-9</sup>, Sil = Schauinsland

### 5.5.2 Niederschlag, Aerosole, Boden und Fließgewässer

Sowohl die nasse als auch die trockene Deposition, gemessen anhand der Aerosole, tragen  $^{129}\text{I}$  in den Boden ein. Außerdem erfolgt ein Austrag über die Fließgewässer. In der folgenden Abbildung 103 werden deshalb die mittleren jährlichen Depositionen durch die Niederschläge und Aerosole und der Austrag über die Fließgewässer mit den Depositionsdichten in den Böden verglichen. Dabei ist jedoch zu beachten, dass die Austräge über das gesamte Einzugsgebiet der Flüsse betrachtet werden, während die anderen Werte an einem bestimmten Standort gemessen sind.

Da das  $^{129}\text{I}$ -Inventar in den oberen 50 cm der Böden um den Faktor 100 höher ist als die Ein- und Austräge wird an der Skala eine Achsenunterbrechung zwischen 500 - 20.000 eingefügt.

Der Vergleich vom Bodeninventar mit den Ein- und Austrägen zeigt, dass  $^{129}\text{I}$  im Boden akkumuliert wird. Die geschätzten Austräge sind deutlich niedriger als die Einträge was zu einer Erhöhung des  $^{129}\text{I}$ -Inventars im Boden führt. Das  $^{129}\text{I}$  gelangt über die atmosphärischen Einträge in den Boden und wird dort von der organischen Substanz festgehalten, wie in Abschnitt 5.3.3.1 gezeigt worden ist. Ein Teil des Iods wird außerdem z. B. von den abfließenden Niederschlägen wieder ausgewaschen [46].

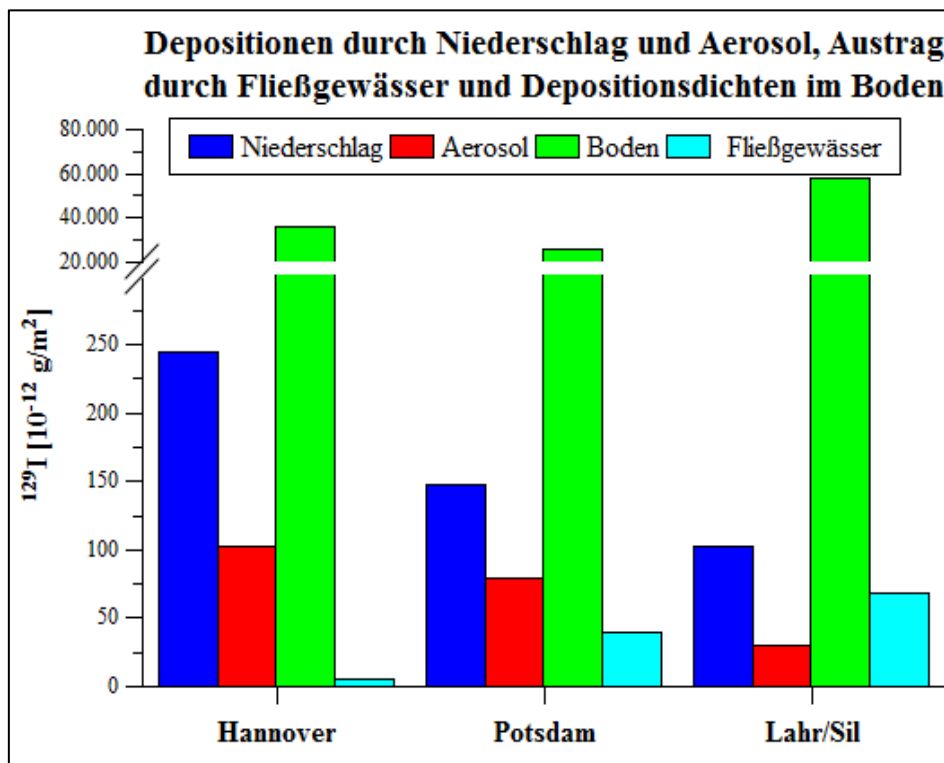


Abbildung 103: Vergleich der jährlichen Deposition durch Niederschlag (blau) und Aerosol (rot) und dem Austrag durch Fließgewässer (türkis) mit der Depositionsdichte in den oberen 50 cm des Bodens (grün) in  $10^{-12} \text{ g/m}^2$ , Sil = Schauinsland

## Ergebnisse und Diskussion

In seiner Studie über  $^{129}\text{I}$  in Böden aus Deutschland hat Aumann ebenfalls den  $^{129}\text{I}$ -Gehalt im Boden mit den Einträgen durch Niederschläge verglichen. Auch bei ihm liegen die Inventare im Boden zwei Größenordnungen über denen im Niederschlag [34, 93]. Die in dieser Arbeit gemessenen Einträge und Bodeninventare entsprechen damit tendenziell den von Aumann veröffentlichten Daten.

Die Isotopenverhältnisse im Niederschlag und in den Aerosolen fallen höher aus als im Boden, da die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen bei ihnen hauptsächlich von der Nordsee beeinflusst werden. Durch die permanenten Einträge in den letzten 50 Jahren sind auch die Isotopenverhältnisse in den Böden gestiegen. Im Boden ist jedoch viel  $^{127}\text{I}$  gespeichert, sodass relativ große Mengen an  $^{129}\text{I}$  eingetragen werden können, ohne das Isotopenverhältnis zu verändern. In Abbildung 104 sind die Isotopenverhältnisse im Boden aus Potsdam im Vergleich mit den dort gemessenen mittleren monatlichen Isotopenverhältnissen im Niederschlag und Aerosol dargestellt. Da das Isotopenverhältnis im Flusswasser nicht an derselben Stelle bestimmt werden kann, wird es nicht mit den anderen Werten verglichen.

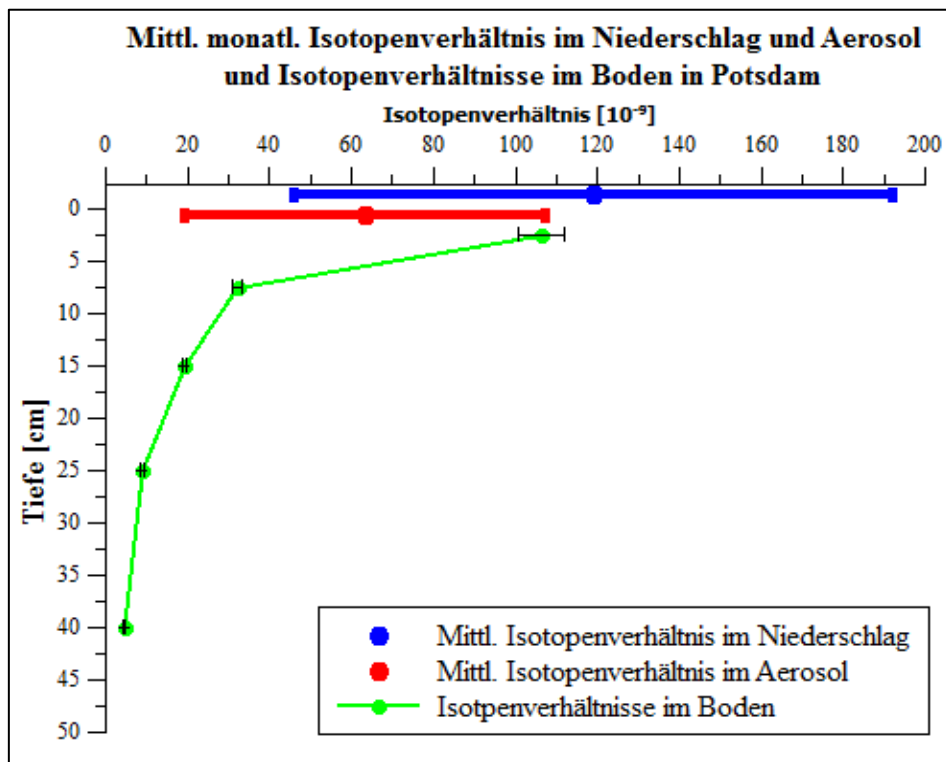


Abbildung 104: Vergleich der mittleren Isotopenverhältnisse in Niederschlag (blau) und Aerosol (rot) mit den Isotopenverhältnissen im Boden (grün) in Potsdam in  $10^{-9}$

Daran, dass die Isotopenverhältnisse insbesondere in den unteren Bodenschichten deutlich niedriger sind als in den Einträgen zeigt sich, dass  $^{129}\text{I}$  hauptsächlich in den oberen Bodenschichten festgehalten wird. Die Migration in tiefere Schichten erfolgt nur langsam.

## Ergebnisse und Diskussion

---

Die Isotopenverhältnisse in den Aerosolen sind außerdem teilweise durch die Resuspension von Bodenpartikeln (Partikel > 1 µm) beeinflusst, weshalb sie einen ähnlichen Bereich abdecken wie die Isotopenverhältnisse in den oberen 10 cm des Bodens [94].

In Tabelle 10 sind neben den Ergebnissen aus Potsdam auch die der anderen Stationen aufgeführt:

**Tabelle 10: Vergleich des mittleren monatlichen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses im Niederschlag und im Aerosol mit den  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen im Boden der jeweiligen Probenahmeorte**

Probenahmeort	Mittl. Isotopenverh. im Niederschlag [ $10^{-9}$ ]	Mittl. Isotopenverh. im Aerosol [ $10^{-9}$ ]	Isotopenverhältnisse im Boden [ $10^{-9}$ ]
Hannover	223,1 ± 168,2	152,8 ± 92,2	2,7 - 52,0
Potsdam	118,6 ± 72,9	63,3 ± 44,0	4,6 - 106,2
Lahr/Schauinsland	112,9 ± 70,1	42,7 ± 35,2	5,9 - 45,4

In Hannover liegen die Isotopenverhältnisse sowohl im Niederschlag als auch in den Aerosolen noch deutlicher über denen im Boden. Da hier die Distanz zur Nordsee am geringsten ist, sind auch die Isotopenverhältnisse im Niederschlag und Aerosol am höchsten, sodass im Boden im Verhältnis immer noch weniger  $^{129}\text{I}$  enthalten ist. Die in den Boden eingetragenen  $^{129}\text{I}$ -Mengen werden durch das ebenfalls im Boden gespeicherte  $^{127}\text{I}$  verdünnt. Die absoluten Gehalte von  $^{129}\text{I}$  im Boden sind demnach deutlich größer als im Niederschlag und Aerosol, sie werden jedoch durch die ebenfalls hohen Gehalte von  $^{127}\text{I}$  ausgeglichen. Da das  $^{127}\text{I}$ -Inventar in der Regel mit der Tiefe konstant ist und das  $^{129}\text{I}$  aus der Atmosphäre in den Boden eingetragen wird, wird das Isotopenverhältnis im Boden von oben nach unten niedriger.

Bei Krupp und Aumann sind ebenfalls Daten zu den Isotopenverhältnisse im Niederschlag (Krupp) und im Boden (Aumann) an denselben Standorten zu finden [34, 93]. Auch bei ihnen liegen die Isotopenverhältnisse im Niederschlag leicht höher ( $6,0 - 9,7 \cdot 10^{-7}$ ) als im Boden ( $0,5 - 4,6 \cdot 10^{-7}$  in den oberen 10 cm). Sie kommen damit zu vergleichbaren Ergebnissen wie in dieser Arbeit.

Allgemein liegen die in der Literatur gefundenen Isotopenverhältnisse im Niederschlag etwas höher als in Aerosolen und Bodenproben (siehe Tabelle 1: Übersicht über die in der Literatur genannten Isotopenverhältnisse). Die gefundenen Ergebnisse stimmen demnach mit der Literatur überein.



### 5.5.3 Isotopenverhältnisse

Um den Einfluss der Konzentrationen von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  auf das Isotopenverhältnis noch einmal deutlich zu machen, werden die berechneten Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von den Gehalten aufgetragen. Um die Luftproben mit den anderen vergleichen zu können werden sie von  $\text{g}/\text{m}^3$  auf  $\text{g (Iod)}/\text{g (Luft)}$  umgerechnet. Dafür wird mit einer Dichte der Luft von  $1,184 \text{ kg}/\text{m}^3$  gerechnet. Da sich sowohl die  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Gehalte als auch die Isotopenverhältnisse in den verschiedenen Probenarten um mehrere Größenordnungen unterscheiden werden beide Achsen logarithmisch skaliert. Zusätzlich werden zum Vergleich von A. Daraoui unveröffentlichte Ergebnisse von Meerwasserproben aus Nord- und Ostsee zur Verfügung gestellt [95].

In Abbildung 105 sind die Isotopenverhältnisse aus Niederschlag, Aerosol, Boden und Oberflächenwasser aus dieser Arbeit in Abhängigkeit von der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration dargestellt und zusätzlich die von Daraoui bestimmten Daten für Nord- und Ostsee.

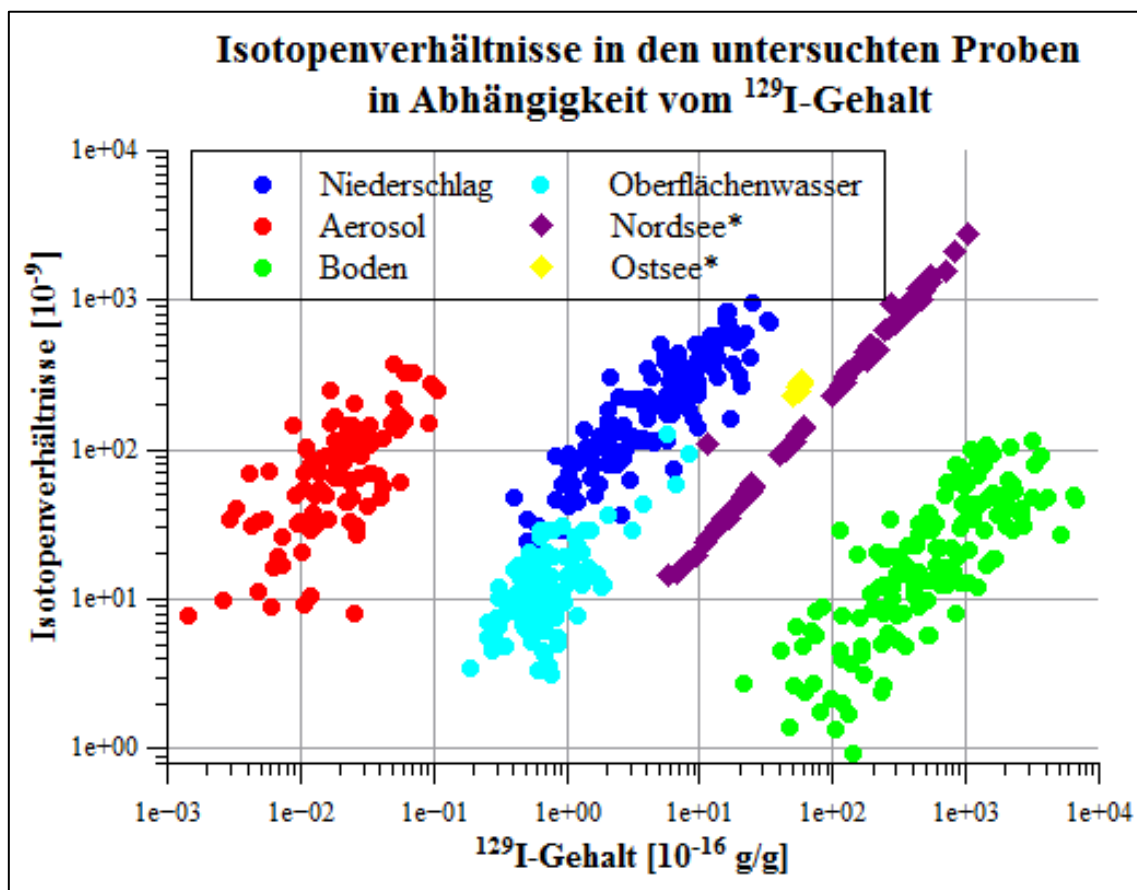


Abbildung 105: Vergleich der Isotopenverhältnisse in allen Kompartimenten mit den  $^{129}\text{I}$ -Gehalten, \* = Daten von A. Daraoui (unveröffentlicht), Aerosol in  $\text{g (Iod)}/\text{g (Luft)}$  mit  $\rho(\text{Luft}) = 1,184 \text{ kg}/\text{m}^3$



Die Isotopenverhältnisse in den Proben stehen mit den  $^{129}\text{I}$ -Gehalten in den Proben in einem direkten Zusammenhang. Daran zeigt sich, dass das  $^{129}\text{I}$  einen direkten Einfluss auf das Isotopenverhältnis einer Probe hat. Beim Niederschlag und Oberflächenwasser ist zu sehen, dass beide ein ähnliches Verhältnis von  $^{129}\text{I}$ -Gehalt zum Isotopenverhältnis haben, da sie auf zwei parallel nebeneinander verlaufenden Linien liegen. Die Werte im Flusswasser sind insgesamt jedoch niedriger als im Niederschlag, was auf eine Verdünnung durch andere Quellen hindeutet.

Im Vergleich mit den Meerwasserproben zeigt sich, dass, vor allem im Niederschlag, die Isotopenverhältnisse zwar im selben Bereich liegen, die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Meerwasser allerdings deutlich höher sind. Hier spielt die höhere Salzkonzentration im Meerwasser eine Rolle. Auch im Aerosol sind die Isotopenverhältnisse ähnlich hoch wie im Niederschlag und Meerwasser. Die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration (angegeben in g (Iod)/g (Luft)) ist noch deutlich niedriger als im Niederschlag. Die höchsten  $^{129}\text{I}$ -Gehalte finden sich in den Bodenproben. Dort sind die Gehalte noch viel höher als im Meerwasser. Die Isotopenverhältnisse sind in den Bodenproben allerdings nicht ganz so hoch.

Um festzustellen ob auch das  $^{127}\text{I}$  die Isotopenverhältnisse beeinflusst, werden in Abbildung 106 die berechneten Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von den  $^{127}\text{I}$ -Gehalten aufgetragen; wiederum im Vergleich mit den Meerwasserproben.

Da die Datenpunkte parallel zur y-Achse verlaufen, sind die Isotopenverhältnisse unabhängig von der  $^{127}\text{I}$ -Konzentration. Es lässt sich allerdings feststellen, dass in den unterschiedlichen Kompartimenten große Unterschiede in den  $^{127}\text{I}$ -Gehalten vorherrschen.

Dadurch lässt sich erklären, warum die Niederschläge und Aerosole ähnlich hohe Isotopenverhältnisse aufweisen wie das Meerwasser, obwohl sie deutlich weniger  $^{129}\text{I}$  enthalten. Da sowohl im Niederschlag als auch in den Aerosolen die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen in einem jeweils deutlich niedrigeren Bereich liegen ergeben sich dieselben Isotopenverhältnisse wie im Meerwasser. Dass im Oberflächenwasser höhere  $^{127}\text{I}$ -Gehalte vorliegen als im Niederschlag liegt daran, dass in den Fließgewässern Wassermassen aus unterschiedlichen Quellen und Regionen gemischt werden, die unterschiedliche Isotopenverhältnisse enthalten. Dabei wird z. B. auch Iod aus den umliegenden Böden ausgewaschen, sodass das durch den Niederschlag eingetragene Isotopenverhältnis verdünnt wird [10]. Somit lässt sich die leichte Verschiebung des Oberflächenwassers im Vergleich zum Niederschlag in Abbildung 105 erklären bzw. die niedrigeren Isotopenverhältnisse.

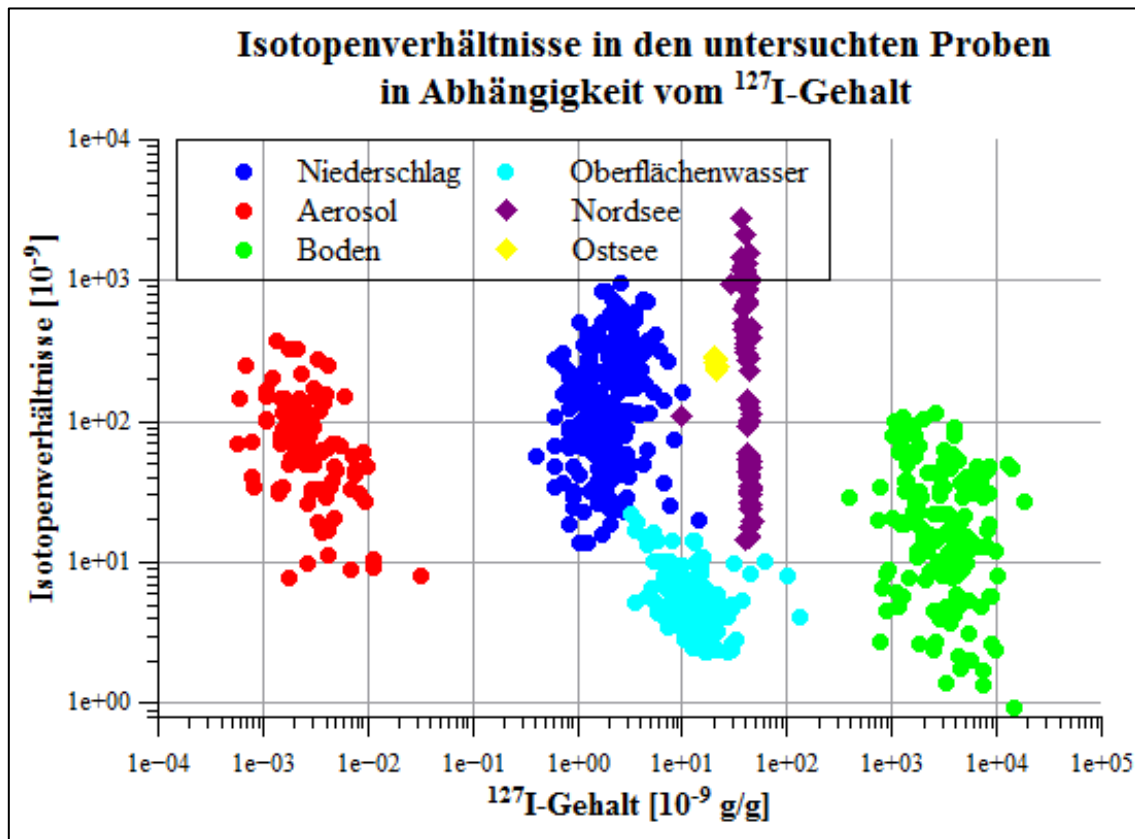


Abbildung 106: Vergleich der Isotopenverhältnisse in allen Kompartimenten mit den  $^{127}\text{I}$ -Gehalten, \* = Daten von A. Daraoui (unveröffentlicht), Aerosol in g (Probe)/g (Iod) mit  $\rho(\text{Luft}) = 1,184 \text{ kg/m}^3$

Auch Michel hat in Untersuchungen von Meerwasser, Niederschlag und Oberflächenwasser aus Niedersachsen eine Verdünnung der Isotopenverhältnisse durch  $^{127}\text{I}$  vom Meer über den Niederschlag in die Oberflächenwässer festgestellt [10].

Im Boden ist durch den Jahrtausende langen Eintrag sehr viel stabiles Iod gespeichert. Er enthält deshalb die größte Menge an  $^{127}\text{I}$ . Daraus resultieren auch die niedrigen Isotopenverhältnisse im Boden. Es muss viel mehr  $^{129}\text{I}$  in den Boden eingetragen werden als das zum Beispiel beim Niederschlag der Fall ist, um eine signifikante Erhöhung des Isotopenverhältnisses zu erreichen.

Daraoui hat bei seinen Messungen von Bodenproben aus Deutschland und Chile ebenfalls beobachtet, dass die Isotopenverhältnisse vom  $^{129}\text{I}$ -Gehalt abhängig sind [12]. Er führt die Änderungen im Isotopenverhältnis auf die Mischung von Iod aus dem Meer mit pränukearem Iod, welches ein deutlich geringeres Isotopenverhältnis aufweist als das Meerwasser, zurück. Die hier gemachten Beobachtungen stimmen demnach gut mit den Literaturdaten überein.

### 5.6 Beurteilung der Ergebnisse

Die in diesem Projekt gefundenen Ergebnisse zeigen, dass in allen Kompartimenten eine massive Veränderung der Isotopenverhältnisse im Vergleich zum prä nuklearen Isotopenverhältnis von  $1,5 \cdot 10^{-12}$  stattgefunden hat [2].

#### *Veränderungen in den Kompartimenten*

Im Vergleich mit früher gemessenen Daten, wie z.B. die seit 1997 am ZSR aufgenommenen Zeitreihen zu Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser sind die  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Einträge relativ konstant geblieben und tendenziell eher zurückgegangen [3–8]. Der Vergleich mit den bereits vorhandenen Daten aus Deutschland aus den letzten 15 bis 20 Jahren ergibt, dass sich keine signifikanten Veränderungen der Ein- und Austräge oder des Inventars feststellen lassen. Da jedoch in den meisten Fällen nicht dieselben sondern nur vergleichbare Standorte beprobt worden sind und außerdem andere Probenahme- und Analysetechniken verwendet wurden ist ein Vergleich nur bedingt möglich. Sowohl im Niederschlag als auch in den Aerosolen stimmen die Isotopenverhältnisse der vorliegenden Arbeit mit den Vergleichswerten überein. Bei den Depositionsdichten im Boden gibt es eine gute Übereinstimmung im Vergleich zur Literatur. Aumann hat an den gleichen bzw. vergleichbaren Standorten etwas höhere Werte gefunden als sie hier vorgestellt worden sind, was sich durch Unterschiede in der Probenahme und der Messtechnik erklären lässt. Die Werte aus diesem Projekt sind in guter Übereinstimmung mit den Werten von Ernst und Daraoui [3, 4, 34]. Da die aktuellen Werte gut mit denen Ende der 1990er Jahre gefundenen übereinstimmen, ist davon auszugehen, dass sich das  $^{129}\text{I}$ -Inventar in den Böden in den letzten 15 Jahren kaum verändert hat. Die Isotopenverhältnisse in den oberen Bodenschichten sind im selben Bereich wie die der in den 1990ern in Deutschland genommenen Proben. Auch die  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen sowie die Isotopenverhältnisse im Fließgewässer sind in den letzten 15 Jahren konstant geblieben.

Um zeitliche Veränderungen im Ein- und Austrag sowie dem Inventar im Boden besser beurteilen zu können, sollten die in dieser Arbeit durchgeführten Messungen zu einem späteren Zeitpunkt noch einmal wiederholt werden. Nur so können mögliche Veränderungen und deren Ausmaße festgestellt werden.

### *Bilanzierung*

Um die Entwicklung des  $^{129}\text{I}$ -Inventars für die nächsten Jahre oder Jahrzehnte zu prognostizieren müsste eine Bilanzierung des Iodtransports erstellt werden. Für die Einträge ist dies über die Depositionsraten durch den Niederschlag und die Aerosole möglich, wobei zwei Dinge zu beachten sind. Zum einen wird durch den Niederschlag immer auch ein Teil der trockenen Deposition mit ausgewaschen. Außerdem werden bei den hier erfassten Werten die Niederschlagssammler an Tagen ohne Niederschlag gespült und so ebenfalls die trockene Deposition mit gemessen. Zum anderen konnte für die trockene Deposition nur der partikelgebundene Anteil des Iods betrachtet werden, welcher maximal 20 - 30 % der Iodkonzentration in der Luft ausmacht [33, 96]. Wie groß der Anteil des gasförmigen Iods an der Deposition ist, ist nicht bekannt. Insgesamt lässt sich der Eintrag des  $^{129}\text{I}$  aus der Atmosphäre über die Niederschläge und die Aerosole nur ungefähr abschätzen.

Das Iodinventar im Boden kann immer nur für eine bestimmte Schichtdicke angegeben werden. Laut Daraoui befinden sich zurzeit (Proben von 1998 - 2003) bei einer Probenahme bis in 50 cm Tiefe mehr als 90 % des  $^{129}\text{I}$  noch in den oberen 20 cm des Bodens [12]. Luo hat bei der Untersuchung von Lössboden (Probenahme bis in 60 bzw. 90 cm Tiefe) aus China im Oberboden (< 20 cm) zwei Größenordnungen höhere  $^{129}\text{I}$ -Gehalte gefunden als in den unteren Schichten [38]. Daher sollten die in diesem Projekt entnommenen 50 cm den aktuellen  $^{129}\text{I}$ -Gehalt in den Böden gut charakterisieren.

Der Austrag von Iodisotopen über die Fließgewässer ist kompliziert zu beschreiben. Es muss dafür bekannt sein wieviel Wasser im Laufe eines Jahres aus Deutschland abgefließen ist, wieviel Iod darin enthalten war und gegebenenfalls wieviel Iod beim Zufluss bereits enthalten ist. Gilfedder hat eine Massenbilanz für stabiles Iod für den Bodensee erstellt [50]. Dabei hat er sowohl Zu- und Abflüsse betrachtet als auch die Iodkonzentration. Die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration in den Flüssen sind im Rahmen dieser Arbeit gemessen worden. Für eine Bestimmung des Austrags sind außerdem die Durchflüsse an den Mündungen bzw. an der Stelle wo der Fluss Deutschland verlässt, ermittelt worden. Bei den Flüssen die nicht in Deutschland entspringen, ist zusätzlich der Eintrag nach Deutschland bestimmt worden. Dafür wurden die Werte an der ersten Messstation in Deutschland verwendet. Mittels dieser Werte ist ein ungefährender Wert für den Austrag ermittelt worden. Zusätzlich muss jedoch der Austrag über den Tidenbereich von Nord- und Ostsee sowie der Flüsse, die nicht in die Einzugsgebiete der großen Wasserstraßen fallen (ca. 10 % des Bundesgebiets) abgeschätzt werden. Da dies aus Zeitgründen nicht möglich war, ist eine Bilanzierung des Iodinventars in Deutschland im Rahmen dieser Arbeit nicht durchführbar.

### *Dosisbewertung*

Da mehr als 80 % des aufgenommenen Iods in der Schilddrüse konzentriert werden ist es sinnvoll die Gefährdung durch  $^{129}\text{I}$  an der Schilddrüsendosis festzumachen [48].

In ihrer Dissertation hat Schmidt berechnet, welches Isotopenverhältnis in der Nahrung und Atemluft eines Menschen vorliegen darf, um auf eine Schilddrüsenjahresdosis von 0,9 mSv zu kommen [6]. Dabei handelt es sich um den Wert, der laut § 47 der Strahlenschutzverordnung durch Emission aus Kerntechnischen Anlagen höchstens zustande kommen darf [97]. Bei einem Erwachsenen wäre dafür ein Isotopenverhältnis von  $1,2 \cdot 10^{-3}$  nötig, unter der Annahme, dass das Isotopenverhältnis in der Nahrung und Atemluft dem in der Schilddrüse entspricht. Anhand eines in der Nähe von  $^{129}\text{I}$ -Emittenten angenommenen Isotopenverhältnisses von  $6,7 \cdot 10^{-5}$  hat sie die Schilddrüsenjahresdosis eines Erwachsenen mit 0,05 mSv bestimmt. Dieser Wert liegt deutlich unter dem zulässigen Wert von 0,3 mSv. Bei der Untersuchung von kompletten Mahlzeiten haben Michel und Mitarbeiter Isotopenverhältnisse von  $10^{-8}$  -  $10^{-7}$  gefunden [96]. Da relativ hohe Iodgehalte in den Nahrungsmitteln gefunden worden sind, hat er angenommen, dass das ursprünglich enthaltene Iod beim Kochen weitgehend verloren gegangen und später durch Zusatz von iodiertem Speisesalz mit niedrigem Isotopenverhältnis ersetzt worden ist. Bei der Untersuchung von menschlichen Schilddrüsen (1998 - 2002) fand er Isotopenverhältnisse zwischen  $2 \cdot 10^{-9}$  -  $3 \cdot 10^{-8}$ . Die relativ niedrigen Werte hat er damit erklärt, dass in den Lebensmitteln die das meiste Iod enthalten die niedrigsten Isotopenverhältnisse gefunden worden sind, da die Isotopenverhältnisse in den Lebensmitteln durch das stabile Iod im Boden verdünnt wurde.

Die höchsten Isotopenverhältnisse der in dieser Arbeit untersuchten Proben sind mit bis zu  $1 \cdot 10^{-6}$  im Niederschlag gefunden worden. Dieser wirkt sich allerdings nur indirekt auf die Iodaufnahme aus, da dadurch der Iodeintrag in den Boden beeinflusst wird und es außerdem zur Deposition von Iod auf Blättern, z. B. bei Gemüse, kommen kann.

Die Aufnahme von  $^{129}\text{I}$  über die Atemluft wird über das Isotopenverhältnis in der Luft bzw. den Aerosolen bestimmt. Neben der direkten Aufnahme über die Atemluft können Aerosole auch über die Nahrung aufgenommen werden, da sie sich außerdem auf den Blättern von Pflanzen ablagern können. In den Aerosolen finden sich maximal Isotopenverhältnisse von  $4 \cdot 10^{-7}$ . Sie liegen demnach mehr als zwei Größenordnungen unter dem für eine erhöhte Schilddrüsendosis relevanten Verhältnis. Die Isotopenverhältnisse in den Aerosolen sind zur heutigen Zeit nicht dosisrelevant.

Das Iod aus dem Boden gelangt über die Aufnahme in Pflanzen entweder direkt in unsere Nahrung oder über den Umweg als Tierfutter. Außerdem besteht bei Blattgemüse die

Möglichkeit, das über die Resuspension von Bodenpartikeln auf den Blättern abgelagerte Iod aus dem Boden direkt aufzunehmen. Mit den Transferfaktoren vom Boden in Nahrungsmittel hat sich z. B. Klipsch in seiner Dissertation beschäftigt [5]. An dieser Stelle soll darauf nicht weiter eingegangen werden. Das höchste Isotopenverhältnis in den in dieser Arbeit untersuchten Böden liegt bei  $1 \cdot 10^{-7}$ . Ebenso wie bei den Aerosolen liegt dieser Wert mehrere Größenordnungen unter dem relevanten Bereich von  $> 10^{-5}$ .

Die zurzeit in Deutschland messbaren Isotopenverhältnisse sind demnach in Bezug auf eine Gefährdung der Bevölkerung durch erhöhte Schilddrüsendosen durch  $^{129}\text{I}$  als unbedenklich einzustufen. Aufgrund der weiterhin kontinuierlichen Freisetzung von  $^{129}\text{I}$  durch die WAAs in La Hague und Sellafield ist jedoch davon auszugehen, dass die Isotopenverhältnisse in den Umweltkompartimenten in Deutschland weiter ansteigen werden. Die Veränderung der Isotopenverhältnisse bzw. des  $^{129}\text{I}$ -Inventars muss auch weiterhin überwacht werden, um eine mögliche Gefährdung der Bevölkerung rechtzeitig zu erkennen und gegebenenfalls Gegenmaßnahmen ergreifen zu können.

# 6 Zusammenfassung und Ausblick

Das natürliche  $^{129}\text{I}$ -Inventar und damit auch das natürliche  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis sind durch die anthropogenen Einträge deutlich ins Ungleichgewicht geraten. Es sind bereits Untersuchungen zur Verteilung des  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt durchgeführt worden. Eine umfassende Betrachtung des Ein- und Austrags sowie des Inventars im Boden ist in Deutschland bisher jedoch nicht durchgeführt worden.

Im Rahmen dieser Arbeit sind deshalb über zwei Jahre monatlich Niederschlags- und Aerosolproben in ganz Deutschland gesammelt worden um den Eintrag von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  zu messen. Zur Bestimmung des Iodinventars im Boden sind außerdem an 30 Probenahmestellen Proben bis in 50 cm Tiefe entnommen worden. Um den Austrag des Iods zu ermitteln sind Quartalsproben von 15 Probenahmestellen an den großen Deutschen Wasserstraßen ebenfalls über zwei Jahre hinweg gesammelt worden.

Im Niederschlag wird eine Abnahme der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration von Norden nach Süden bzw. Westen nach Osten festgestellt. Dies entspricht einer Abnahme mit größerer Entfernung zur Küste. Beim  $^{127}\text{I}$  lässt sich ein deutlicher Einfluss der Nordsee erkennen, für die Stationen die weniger als 50 km von der Nordsee entfernt sind. Bei allen anderen Stationen ergeben sich recht geringe Unterschiede. Die Isotopenverhältnisse sind im Norden und Westen wiederum deutlich höher als im Süden und Osten. Das Isotopenverhältnis wird hauptsächlich durch die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte bestimmt. Die berechneten Depositionsraten bestätigten die bereits anhand der Konzentrationen gemachten Beobachtungen. Sie sind mit der Entfernung der Probenahmestandorte von der Küste korreliert. Bei den  $^{127}\text{I}$ -Depositionsraten lassen sich zwei Gruppen beobachten. Die Standorte in bis zu 50 km Entfernung von der Nordseeküste sind direkt von der Nordsee beeinflusst und weisen etwa doppelt so hohe Depositionen wie die restlichen Standorte auf. Ein Vergleich der  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Depositionen ergab keine Korrelation zwischen den beiden, sodass auf unterschiedliche Quellen für die beiden Isotope im Niederschlag geschlossen werden kann.

Um die Iodgehalte in den Aerosolen zu bestimmen sind Filterproben von vier Messstationen analysiert worden. Wie auch beim Niederschlag sind die höchsten  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Norden gefunden worden. Die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration im Osten ist etwas höher gewesen als in der Mitte Deutschlands, da der Wert wahrscheinlich durch die Nähe zu einer Großstadt (Berlin) beeinflusst wird. Im Süden ist der Wert erwartungsgemäß am niedrigsten. Beim  $^{127}\text{I}$  lässt sich feststellen, dass die Werte eher lokal beeinflusst sind. Die Isotopenverhältnisse folgen dem erwarteten Trend. Es hat sich eine Abnahme von Norden nach Süden und von Westen nach Osten ergeben. Auch die berechneten Depositionsraten entsprechen den Erwartungen. Für das

$^{129}\text{I}$  sind sie im Norden am höchsten und zeigen eine gute lineare Korrelation mit der Entfernung zur Nordsee, die dessen Hauptquelle ist. Bei der  $^{127}\text{I}$ -Deposition zeigen sich deutlich die lokalen Einflüsse, wie z.B. die Nutzung fossiler Brennstoffe als Energiequelle. Sie ist deshalb nicht mit der Entfernung der Probenahmestandorte von der Nordsee korreliert. Auch beim Aerosol hat sich keine Korrelation zwischen den Depositionsraten ergeben.

Der Eintrag von  $^{129}\text{I}$  nach Deutschland scheint sowohl im Niederschlag als auch im Aerosol von der Nordsee bestimmt zu werden, was die in der Literatur gemachten Angaben bestätigt.

Zusätzlich wurde bei den Aerosolen ein Vergleich von zwei unterschiedlichen Messsystemen in Braunschweig durchgeführt. Insgesamt waren die Ergebnisse der Glasfaserfilter aus der Iodfalle, die auch für die anderen Stationen untersucht worden sind, besser mit den Ergebnissen aus Hannover (ebenfalls Glasfaserfilter) vergleichbar.

Die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration im Boden hat für fast alle Standorte den erwarteten exponentiellen Abfall mit der Tiefe gezeigt. Die gefundenen Werte waren im Norden und Westen am höchsten und nahmen nach Süden und Osten ab. Die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte sind in den meisten Bodenproben mit der Tiefe konstant gewesen. Ausnahmen bilden die Proben von Norderney und aus Gohre, die jedoch spezielle Bodenparameter aufwiesen. Es ließ sich keine geographische Tendenz für die  $^{127}\text{I}$ -Konzentration feststellen, die Bodeneigenschaften spielen dabei eine größere Rolle als der Iodeintrag. Aufgrund der mit der Tiefe konstanten  $^{127}\text{I}$ -Konzentration wird das Isotopenverhältnis hauptsächlich von der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration beeinflusst. Die höchsten Werte in den oberen Schichten werden im Norden und Westen gefunden. Wie erwartet sinkt das Isotopenverhältnis in allen Proben mit der Tiefe ab. Die höchsten Werte für die  $^{129}\text{I}$ -Depositionsdichten finden sich im Norden und Westen. Das  $^{129}\text{I}$ -Inventar in den Böden nimmt nach Süden und Osten ab. Für das  $^{127}\text{I}$  lassen sich keine eindeutigen Trends in der Deposition ausmachen. Tendenziell werden die Werte jedoch nach Osten hin niedriger. Eine Korrelation mit der Entfernung zur Nordsee ließ sich weder bei  $^{129}\text{I}$  noch beim  $^{127}\text{I}$  feststellen.

Die Fläche in Aachen ist gesondert betrachtet worden, da sie etwa zwei Jahre vor der Probenahme neu angelegt worden ist. Es ließ sich deutlich der Einfluss der Bearbeitung erkennen.

Beim Vergleich mit den untersuchten Bodenparametern haben  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  ein unterschiedliches Verhalten gezeigt. Wird der Iodgehalt mit dem Gehalt an organischer Substanz verglichen zeigt das  $^{129}\text{I}$  eine positive lineare Korrelation. Für das  $^{127}\text{I}$  lässt sich nur eine schwache Korrelation feststellen. Beim  $^{127}\text{I}$  haben sich dagegen positive Korrelationen mit den Gehalten an Aluminium- und Eisenoxiden finden lassen. Für das  $^{129}\text{I}$  ergaben sich keine



Korrelationen mit den Oxidgehalten. Mangan ist meist negativ geladen und sorbiert deshalb kaum Iod. Es kann aber als Oxidationsmittel, auch für Iodid wirken.

Die Iodgehalte in den Oberflächenwasserproben sind quartalsweise analysiert worden, da die Monatswerte nur geringe Variationen aufwiesen. Die gefundenen  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen sind tendenziell im Norden am höchsten gewesen. Da jedoch alle Flüsse mit Ausnahme der Donau von Süden nach Norden fließen, lässt sich ein Einfluss der Reemissionen aus der Nordsee nicht eindeutig bestimmen. Die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte in den Flüssen sind sehr unterschiedlich, da sie von verschiedenen Quellen beeinflusst werden. Sie sind jedoch unabhängig vom aus der Nordsee freigesetzten Iod. Bei den Isotopenverhältnissen fanden sich wiederum die höchsten Werte im Norden und Westen. Sie sind hauptsächlich durch den  $^{129}\text{I}$ -Gehalt beeinflusst. Die berechneten jährlichen Austräge liegen für  $^{129}\text{I}$  bei  $272,4 \cdot 10^{-12} \text{ g/m}^2$  und für  $^{127}\text{I}$  bei  $23,7 \cdot 10^{-3} \text{ g/m}^2$ .

Der Vergleich der Deposition durch Niederschlag und Aerosole hat bei allen Vergleichsstationen ergeben, dass die Deposition durch Niederschläge dominiert. Auch das durchschnittliche Isotopenverhältnis ist im Niederschlag höher als im Aerosol. Vermutlich ist im Niederschlag verhältnismäßig mehr  $^{129}\text{I}$  enthalten als in den Aerosolen.

Das  $^{129}\text{I}$ -Inventar im Boden ist um zwei Größenordnungen höher als im Niederschlag und in den Aerosolen. Der Austrag ist außerdem niedriger als die Einträge. Die Isotopenverhältnisse im Boden sind dagegen insbesondere in den unteren Bodenschichten deutlich niedriger als im Niederschlag und in den Aerosolen. In den oberen 10 cm des Bodens finden sich ähnliche Isotopenverhältnisse wie in den Aerosolen, da diese teilweise durch Reemissionen von Bodenpartikeln beeinflusst werden.

Werden die Isotopenverhältnisse mit den Gehalten an  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  verglichen zeigt sich, dass das Isotopenverhältnis hauptsächlich durch das  $^{129}\text{I}$  beeinflusst wird. Die größte  $^{129}\text{I}$ -Konzentration findet sich in den Bodenproben. Da dort jedoch auch die höchsten  $^{127}\text{I}$ -Gehalte vorliegen sind die Isotopenverhältnisse dort relativ niedrig. Die Isotopenverhältnisse im Niederschlag und Aerosol sind fast so hoch wie im Meerwasser, was den Einfluss der Nordsee deutlich macht. Die Iodkonzentration im Meerwasser ist insgesamt jedoch höher als im Niederschlag und insbesondere als in den Aerosolen. In den Fließgewässern sind die Isotopenverhältnisse aufgrund der Verdünnung, durch aus dem Boden ausgewaschenes Iod, niedriger [10].

Die Beurteilung der Ergebnisse zeigt, dass sich die atmosphärischen Einträge in den letzten 15 - 20 Jahren nicht signifikant verändert haben. Auch bei den Inventaren im Boden ergeben sich keine deutlichen Veränderungen.

Eine Bilanzierung des  $^{129}\text{I}$ -Kreislaufs in Deutschland konnte nicht durchgeführt werden, da die Datenlage nicht ausreichend ist.

Die Gefährdung der Bevölkerung ist anhand der Schilddrüsendosen betrachtet worden. Die Beurteilung ergab, dass gemessenen Isotopenverhältnisse mehr als zwei Größenordnungen unter dem als kritisch angesehenen Verhältnis von  $> 10^{-5}$  liegen.

Im Rahmen dieser Arbeit ist bereits eine breite Datengrundlage zu den Einträgen, dem Inventar und den Austrägen von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Deutschland präsentiert worden. Es bleiben jedoch einige Punkte offen, die einer weiteren Untersuchung bedürfen. Anhand der in dieser Arbeit gesammelten Daten lässt sich noch nicht klären wie weit der Einfluss des *sea-sprays* ins Landesinnere reicht. Dafür müssten mehr Niederschlagsmessungen in Küstennähe durchgeführt werden und diese auf  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  hin untersucht werden. Dabei sollte der Sammelzeitraum weiter verkürzt werden, um eine bessere Auflösung der Daten zu erreichen und weiterhin die Windrichtung (vom Meer oder vom Festland) aus der die Niederschläge kommen mit betrachtet werden.

Des Weiteren sollte der Unterschied in den Sammelsystemen für die Aerosolfilter weiter untersucht werden. Trotz unterschiedlicher Sammeleigenschaften der Filter sollten sich keine Unterschiede in den Isotopenverhältnissen ergeben. Idealerweise müssten die beiden Sammelsysteme dabei direkt nebeneinander positioniert werden, damit sie die gleiche Luft ansaugen. Auch der Einfluss der Bodenparameter auf die Sorption von Iod im Boden sollte durch die Entnahme von weiteren Bodenproben eingehender untersucht werden.

Um den Austrag von Iod durch Fließgewässer besser bilanzieren zu können, müssen die Gebiete betrachtet werden, welche nicht von den großen Deutschen Wasserstraßen entwässert werden, da diese im Rahmen dieses Projekts nicht erfasst werden konnten. Auch stellt sich die Frage, in wieweit der Tideneinflussbereich mitbetrachtet werden muss, da hier eine Vermischung von Fluss- und Meerwasser erfolgt. Außerdem sollte versucht werden den Anteil des gasförmigen Iods an der Deposition zu bestimmen. So könnte eine Gesamtbilanz für den Iodkreislauf in Deutschland erstellt werden.

Insbesondere sollte die Speziation des Iods in allen Kompartimenten betrachtet werden. Da dies jedoch noch nicht bei allen Probenarten direkt möglich ist, müssen dafür geeignete Methoden, z.B. Extraktionen, entwickelt werden. Dadurch könnten weitere Informationen über den Transport des Iods in der Umwelt gewonnen werden.

## 7 Anhang

### 7.1 Charakteristische Grenzen

Kalibriergeradenmethoden nach DIN 32645 [71]

Kalibrationsgerade

$$y = a + b \cdot x$$

Reststandardabweichung

$$s_y = \sqrt{\frac{\sum (y_i - \hat{y}_i)^2}{N-2}} = \sqrt{\frac{\sum [y_i - (a + b \cdot x_i)]^2}{N-2}}$$

Steigung

$$b = \frac{\sum (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sum (x_i - \bar{x})^2}$$

Standardabweichung der Steigung

$$s_b = \sqrt{\frac{s_y^2}{\sum (x_i - \bar{x})^2}}$$

Nachweisgrenze

$$\begin{aligned} x_{\text{NG}} &= \frac{s_y}{b} \cdot t_{f, \bar{P}} \cdot \sqrt{\frac{1}{n_A} + \frac{1}{N} + \frac{\bar{x}^2}{\sum (x_i - \bar{x})^2}} \\ &= \frac{s_y}{b} \cdot t_{f, \bar{P}} \cdot \sqrt{\frac{1}{n_A} + \frac{1}{N} + \frac{s_b^2 \cdot \bar{x}^2}{s_y^2}} \end{aligned}$$

Mit  $f = N-2$  und  $\bar{P} = 95\%$ , einseitige Fragestellung,  $x_{\text{NG}}$  = Nachweisgrenze,  $s_y$  = Reststandardabweichung der Messwerte  $y_i$  zur Kalibrationsgerade,  $b$  = Steigung der Kalibrationsgerade,  $t_{f, \bar{P}}$  = Tabellenwert der t-Verteilung,  $n_A$  = Anzahl von Parallelbestimmungen in einer Analysenprobe,  $N$  = Anzahl der Gehaltstufen der Kalibration,  $\bar{x}$  = Mittelwert der  $N$  Standardgehalte,  $x_i$  = Gehalt des  $i$ -ten Kalibrationsstandards

Erkennungsgrenze nach DIN 25842-10 [72]

Das Verfahren für die Berechnung der Erkennungsgrenze nach DIN 25842-10 ist in der Dissertation von Szidat beschrieben [7].

Erkennungsgrenze ( $x_{129}^*$  in fg)

$$x_{129}^* = k_{1-\alpha} \cdot \tilde{u}(0)$$

Mit

$$\tilde{u}(0) = \sqrt{2 \cdot u(0)^2}$$

$u(0)$  = Standardmessunsicherheit der Blindwertproben als Standardabweichung der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration der Blindwerte,  $k_{1-\alpha}$  = Quantil der Normalverteilung zur Wahrscheinlichkeit  $\alpha$ , dass ein Fehler 1. Art begangen wird ( $\alpha = 0,05$  und somit  $k_{1-\alpha} = 1,645$ )

## 7.2 Braunschweig

Da bei der Untersuchung der Aerosolfilter aus Braunschweig signifikante Unterschiede zu den anderen Stationen festgestellt worden sind, ist ein Vergleich zweier Messsysteme durchgeführt worden, wie bereits kurz in Abschnitt 5.2.2 erläutert wurde. An dieser Stelle werden die Ergebnisse ausführlicher beschrieben und diskutiert.

Die Ergebnisse der  $^{129}\text{I}$ -Gehalte sind in Abbildung 107 zu sehen. Die Werte für die Agrarmeteorologie reichen von  $1,1 - 21,3 \cdot 10^{-17} \text{ g/m}^3$ , die der PTB sind signifikant höher und liegen zwischen  $7,4 - 28,1 \cdot 10^{-17} \text{ g/m}^3$ . Alle gemessenen Werte aus Braunschweig sind im Vergleich mit den anderen vier Stationen jedoch absolut gesehen eher niedrig und liegen im unteren Drittel des gemessenen Schwankungsbereichs ( $1,2 - 88,9 \cdot 10^{-17} \text{ g/m}^3$ ).

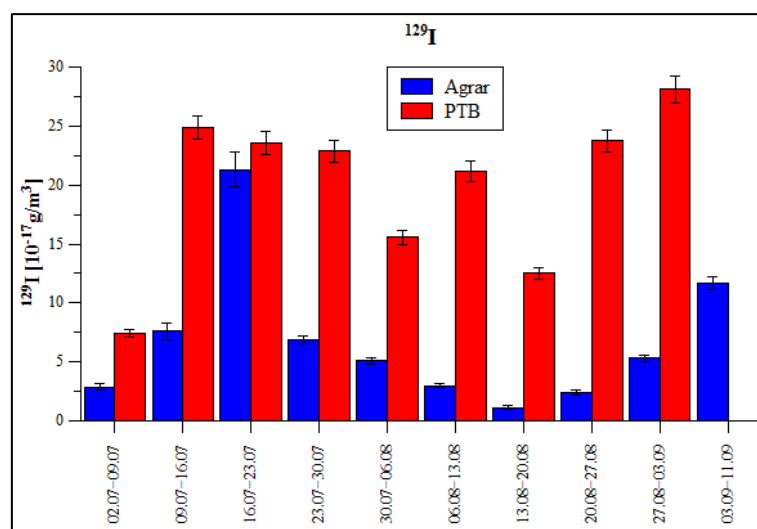


Abbildung 107: Ergebnisse der Vergleichsmessung in Braunschweig für  $^{129}\text{I}$

Die am nächsten zu Braunschweig gelegene Vergleichsstation ist Hannover, weshalb die Werte mit dem Wert von August 2012 verglichen werden. Der Wert für Juli 2012 steht aus dem bereits genannten Grund leider nicht zur Verfügung. In Hannover wurden im August 2012  $19,6 \cdot 10^{-17} \text{ g/m}^3$   $^{129}\text{I}$  gemessen. Der Mittelwert der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration der im betrachteten Zeitraum von der PTB gesammelten Proben ( $20,0 \cdot 10^{-17} \text{ g/m}^3$ ) ist mehr als dreimal so hoch wie der der Proben aus der Iodfalle der Agrarmeteorologie ( $6,7 \cdot 10^{-17} \text{ g/m}^3$ ). Der Wert der PTB Proben stimmt als gut mit dem aus Hannover überein. Das ist etwas unerwartet, da es sich wie erwähnt um unterschiedliche Sammelsysteme handelt. Es wurde zunächst eine bessere Übereinstimmung mit dem Wert der Agrarmeteorologie vermutet. Für das gemessene  $^{127}\text{I}$  ergibt sich jedoch ein gegenteiliges Bild, wie in Abbildung 108 gezeigt ist:

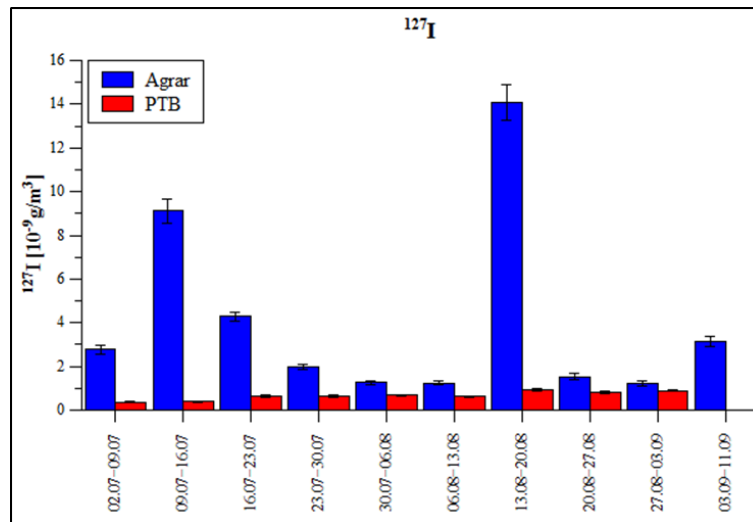


Abbildung 108: Ergebnisse der Vergleichsmessung in Braunschweig für  $^{127}\text{I}$

Bei den  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen finden sich in den Proben der Agrarmeteorologie Werte zwischen  $1,2 - 14,1 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ , in den Proben der PTB jedoch nur  $0,37 - 0,93 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ .

Werden die mittleren Werte aus Braunschweig mit dem vom August 2012 ( $5,8 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ ) aus Hannover verglichen, zeigt sich, dass der Wert aus Hannover überdurchschnittlich hoch war. Er passt also deutlich besser zu dem der Agrarmeteorologie. Für  $^{127}\text{I}$  liegen die Werte der Agrarmeteorologie im selben Bereich wie die anderen Stationen ( $0,5 - 9,5 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ ), während die der PTB sich nur mit dem unteren Bereich überschneiden. Dies zeigt sich auch in den mittleren  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen. Der Wert der Agrarmeteorologie ( $4,1 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ ) liegt in der gleichen Größenordnung wie der Mittelwert von Potsdam ( $3,8 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ ). Dort wird der höchste Wert der vier Vergleichsstationen gemessen.

Der Mittelwert der PTB-Proben für  $^{127}\text{I}$  ( $0,66 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ ) ist dagegen fast um den Faktor drei kleiner als der niedrigste Wert der Vergleichsstationen (Offenbach  $1,8 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$ ).

Für die Agrarmeteorologie ergeben sich Isotopenverhältnisse von  $8,2 - 49,0 \cdot 10^{-9}$  (siehe Abbildung 53). Der Wert vom 13.8. - 20.8. liegt aufgrund von einem niedrigen  $^{129}\text{I}$ - und einem sehr hohen  $^{127}\text{I}$ -Gehalt nur bei  $0,8 \cdot 10^{-9}$  und wird von der Betrachtung ausgeschlossen. Die Werte stimmen gut mit denen der anderen vier Stationen ( $8,0 - 377,3 \cdot 10^{-9}$ ) überein. Die Werte der PTB-Filter liegen dagegen zwischen  $132,0 - 621,8 \cdot 10^{-9}$  und weisen damit teilweise deutlich höhere Werte auf als alle anderen Stationen. Dies lässt sich wiederum durch die Mittelwerte verdeutlichen. Während der Mittelwert der Agrarmeteorologie mit  $26,1 \cdot 10^{-9}$  sogar noch unterhalb derer der anderen Stationen liegt, ist der Wert der PTB mit  $314,5 \cdot 10^{-9}$  hingegen doppelt so hoch wie der aus Hannover ( $152,8 \cdot 10^{-9}$ ).

Auch die  $^{127}\text{I}$ -Werte zeigten gute Übereinstimmung. Lediglich die  $^{129}\text{I}$  zeigten für den untersuchten Zeitraum einen großen Unterschied (Faktor 3) in den Werten.

Die Ursache für die stark unterschiedlichen Werte könnte in den verwendeten Filtermaterialien liegen. Membranfilter (wie die Polypropylenfilter der PTB) haben größere Strömungswiderstände als Faserfilter (z.B. Glasfaserfilter (aus den Iodfallen)). Dadurch ergibt sich auch eine geringere Beladungskapazität. Um den Strömungswiderstand zu verringern kann entweder die Filtergröße erhöht werden, die Porengröße oder bei Membranfiltern die Anzahl der Poren vergrößert oder die Dicke des Filters verringert werden. Dies wirkt sich jedoch zumeist negativ auf die Sammeleffizienz aus. Da die Iodfallen und der *high volume sampler* der PTB sowohl mit sehr unterschiedlichen Durchflussgeschwindigkeiten als auch sehr unterschiedlichen Filtergrößen und -arten betrieben werden, können sich dadurch große Unterschiede in der Sammeleffizienz ergeben. Dieser Effekt wirkt sich auch auf die ermittelten Iodkonzentrationen aus. Es bleibt jedoch unklar, warum sich auch deutliche Unterschiede in den Isotopenverhältnissen ergeben. Diese sollten laut Literatur unabhängig von der Partikelgröße sein [4, 94]. Warum sich trotzdem Unterschiede in den  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen zwischen den beiden Sammelsystemen ergeben ließ im Rahmen dieser Arbeit nicht feststellen.

### 7.3 Aachen

Die Probenahmefläche in Aachen wird getrennt von den anderen Stationen betrachtet, da die Fläche zwei Jahre vor der Probenahme neu angelegt worden ist. Es wird deshalb eine gleichmäßige Verteilung des Iods in den oberen Bodenschichten erwartet. In Abbildung 109 sind die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen im Bodenprofil aus Aachen dargestellt. Zur besseren Vergleichbarkeit mit den Werten der anderen Proben ist das Profil aus Essen (ca. 100 km Nordöstlich) ebenfalls in der Graphik eingetragen.

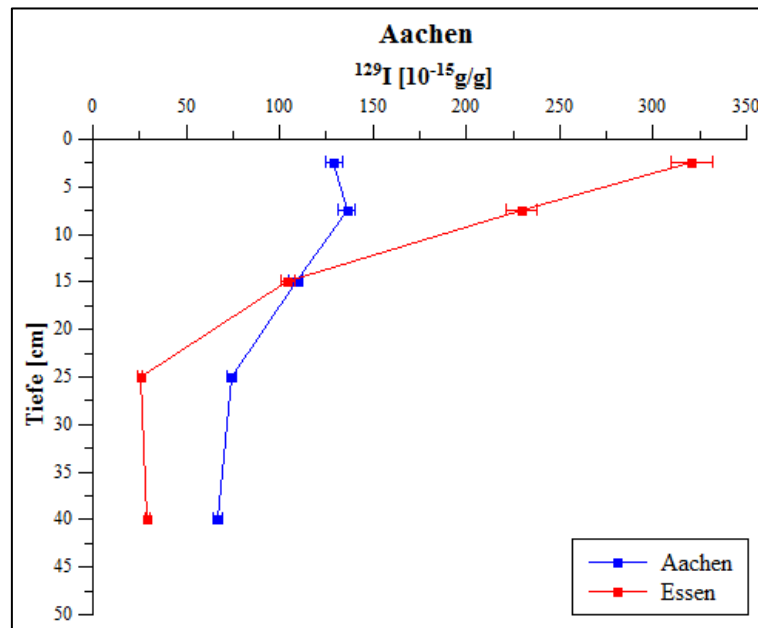


Abbildung 109:  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Aachen in Abhängigkeit von der Tiefe im Vergleich mit Essen

Die gemessenen  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen reichen von  $67,1 - 136,0 \cdot 10^{-15}$  g/g. Die oberen 20 cm weisen dabei einen nahezu konstanten  $^{129}\text{I}$ -Gehalt ( $108,9 - 136,0 \cdot 10^{-15}$  g/g) auf. Unterhalb von 20 cm werden die Werte niedriger ( $67,1 - 74,5 \cdot 10^{-15}$  g/g), sind im Vergleich zu Essen ( $25,4 - 29,2 \cdot 10^{-15}$  g/g) aber immer noch deutlich erhöht. Dies zeigt deutlich die Homogenisierung der Bodenschichten.

Die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte sind in der Regel mit der Tiefe konstant. Hier sollte eine Homogenisierung der Bodenschichten keine großen Änderungen hervorrufen. Sollte allerdings anderer Boden auf die Fläche aufgetragen worden sein, dessen Iodgehalt sich deutlich vom ursprünglichen Boden unterscheidet, müsste dies im Profil sichtbar werden. In Abbildung 110 sind die gemessenen Iodkonzentrationen aus Aachen und Essen dargestellt.

Da sich die gemessenen  $^{127}\text{I}$ -Werte mit der Tiefe nicht signifikant ändern, lässt sich hier keine große Veränderung feststellen. Da davon auszugehen ist, dass das  $^{127}\text{I}$  auch vorher gleichmäßig über die Tiefe verteilt gewesen ist, ist hier auch nicht mit einer sichtbaren Veränderung gerechnet worden.

Die Isotopenverhältnisse sollten demnach in Aachen mit der Tiefe relativ konstant sein, da sowohl das  $^{129}\text{I}$  als auch das  $^{127}\text{I}$  kaum Variationen mit der Tiefe aufwiesen. Die berechneten Isotopenverhältnisse sind bereits in Abschnitt 5.3.2 graphisch dargestellt worden.

Die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte und somit auch das Isotopenverhältnis weisen eine deutliche Veränderung im Vergleich mit einer ungestörten Fläche auf. Beim  $^{127}\text{I}$  lässt sich dieser Einfluss nicht eindeutig feststellen, da dieses in der Regel einen konstanten Verlauf mit der Tiefe aufweist, woran

auch eine Homogenisierung der Bodenschichten nichts ändern würde. Lediglich der Eintrag von ortsfremdem Boden mit einem anderen Gehalt an stabilem Iod hätte einen Einfluss.

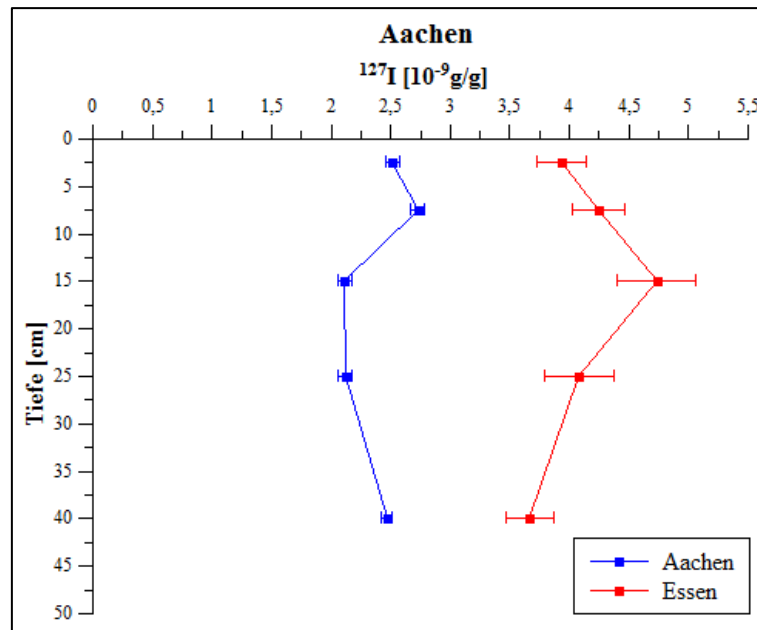


Abbildung 110:  $^{127}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Aachen in Abhängigkeit von der Tiefe im Vergleich mit Essen

## 7.4 Daten

### Niederschlag

Tabelle 11: Messdaten der Niederschlagsproben

Monat	Nieder- schlag in mm	Norderney						Schleswig						
		$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g		$^{129}\text{I}$ in $10^{-16}$ g/g		$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$		Nieder- schlag in mm	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g		$^{129}\text{I}$ in $10^{-16}$ g/g		$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	
		W	U	W	U	W	U		W	U	W	U	W	U
<b>Mrz. 11</b>	8	9,8	0,33	16,4	0,59	165	8	24	1,4	0,08	5,4	0,20	395	26
<b>Apr. 11</b>	8	5,9	0,44	19,2	0,69	319	26	10	1,8	0,15	6,1	0,23	329	29
<b>Mai 11</b>	45	2,5	0,19	16,0	0,57	636	54	72	2,3	0,11	12,9	0,48	546	32
<b>Jun. 11</b>	112	2,2	0,22	13,2	0,47	591	62	91	2,2	0,13	10,9	0,40	490	33
<b>Jul. 11</b>	88	3,5	0,17	20,1	0,72	558	33	137	2,3	0,14	4,9	0,18	208	14
<b>Aug. 11</b>	128	2,0	0,09	11,0	0,39	542	31	248	1,5	0,13	6,8	0,24	454	42
<b>Sep. 11</b>	89	3,6	0,18	9,6	0,35	264	16	128	2,5	0,11	10,0	0,36	388	21
<b>Okt. 11</b>	77	2,8	0,19	11,9	0,43	421	32	101	2,3	0,17	11,6	0,43	487	40
<b>Nov. 11</b>	5	3,4	0,13	12,3	0,44	354	19	19	2,5	0,17	16,7	0,60	650	50
<b>Dez. 11</b>	158	2,5	0,11	24,6	0,88	987	55	135	2,2	0,10	12,6	0,45	561	33
<b>Jan. 12</b>	89	2,4	0,10	16,4	0,59	662	36	104	2,0	0,06	12,1	0,44	599	29
<b>Feb. 12</b>	17	4,2	0,16	32,2	1,15	747	39	41	3,5	0,09	19,0	0,68	531	23
<b>Mrz. 12</b>	13	5,4	0,15	23,3	0,84	424	19	13	3,1	0,06	18,6	0,66	582	23



## Anhang

<b>Apr. 12</b>	49	4,5	0,17	17,3	0,62	378	20	48	2,5	0,07	7,6	0,27	303	14	
<b>Mai 12</b>	47	3,0	0,13	8,6	0,31	279	15	54	1,9	0,04	3,8	0,14	197	8	
<b>Jun. 12</b>	100	3,5	0,11	7,9	0,29	224	11	93	3,1	0,14	7,3	0,26	230	13	
<b>Jul. 12</b>	128	3,1	0,14	13,4	0,48	422	25	169	3,4	0,12	6,0	0,22	173	9	
<b>Aug. 12</b>	85	4,6	0,07	33,6	1,20	724	28	60	5,2	0,11	8,7	0,31	165	7	
<b>Sep. 12</b>	98	2,3	0,07	13,3	0,48	567	27	87	4,1	0,14	13,1	0,48	315	16	
<b>Okt. 12</b>	104	2,0	0,04	10,6	0,38	522	21	89	2,3	0,07	9,6	0,35	407	19	
<b>Nov. 12</b>	50	2,2	0,06	16,3	0,59	732	33	65	2,6	0,08	12,7	0,46	475	23	
<b>Dez. 12</b>	108	1,8	0,04	16,0	0,57	852	36	112	1,9	0,08	7,2	0,26	370	20	
<b>Jan. 13</b>	44	2,4	0,05	16,1	0,09	669	14	86	2,1	0,05	15,5	0,56	739	31	
<b>Feb. 13</b>	21	3,5	0,04	21,4	0,58	609	26	27	2,7	0,05	16,0	0,59	574	23	
Hannover								Essen							
Monat	Nieder- schlag in mm	<sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup> g/g		<sup>129</sup> I in 10 <sup>-16</sup> g/g		<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup>		Nieder- schlag in mm	<sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup> g/g		<sup>129</sup> I in 10 <sup>-16</sup> g/g		<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup>		
		W	U	W	U	W	U		W	U	W	U	W	U	
<b>Mrz. 11</b>	9	2,5	0,07	10,8	0,40	418	18	19	3,9	0,23	9,5	0,35	238	16	
<b>Apr. 11</b>	46	2,4	0,14	4,0	0,15	163	11	27	2,7	0,12	3,3	0,12	121	7	
<b>Mai 11</b>	23	3,2	0,12	5,6	0,21	174	9	23	4,3	0,13	8,2	0,29	186	9	
<b>Jun. 11</b>	96	2,1	0,13	4,2	0,16	196	14	84	3,2	0,17	9,4	0,34	287	18	
<b>Jul. 11</b>	54	1,5	0,14	3,4	0,12	220	21	116	3,2	0,19	8,8	0,32	275	19	
<b>Aug. 11</b>	77	1,4	0,10	1,9	0,07	132	11	147	1,7	0,12	2,2	0,08	128	10	
<b>Sep. 11</b>	33	2,2	0,19	1,5	0,06	67	6	57	6,5	0,38	2,5	0,09	37	3	
<b>Okt. 11</b>	62	1,7	0,13	3,8	0,14	224	19	79	3,7	0,05	4,4	0,16	119	5	
<b>Nov. 11</b>	2	2,5	0,15	2,0	0,07	80	6	6	3,1	0,12	3,7	0,13	117	6	
<b>Dez. 11</b>	97	2,8	0,20	5,6	0,20	199	16	141	2,5	0,13	8,5	0,30	336	21	
<b>Jan. 12</b>	103	1,4	0,10	5,6	0,20	382	29	128	1,7	0,07	9,2	0,23	520	24	
<b>Feb. 12</b>	14	1,7	0,06	15,3	0,38	865	36	27	7,3	0,21	20,4	0,73	275	13	
<b>Mrz. 12</b>	14	1,3	0,04	4,3	0,15	315	15	21	6,5	0,21	9,3	0,33	142	7	
<b>Apr. 12</b>	22	3,2	0,11	6,1	0,22	189	9	69	4,7	0,15	5,6	0,20	117	6	
<b>Mai 12</b>	50	2,5	0,13	5,0	0,18	198	12	41	3,0	0,16	6,1	0,22	198	13	
<b>Jun. 12</b>	70	1,4	0,09	1,7	0,07	125	10	93	2,9	0,11	2,6	0,10	88	5	
<b>Jul. 12</b>	90	2,3	0,12	3,0	0,11	125	8	119	3,1	0,11	3,7	0,13	119	6	
<b>Aug. 12</b>	46	4,6	0,16	2,9	0,11	63	3	33	3,0	0,13	3,7	0,13	123	7	
<b>Sep. 12</b>	34	1,5	0,06	2,0	0,07	132	7	44	3,8	0,19	4,4	0,16	115	7	
<b>Okt. 12</b>	78	0,9	0,06	1,3	0,05	137	10	87	1,3	0,04	1,4	0,05	105	5	
<b>Nov. 12</b>	30	1,1	0,05	2,4	0,09	227	14	40	2,7	0,08	3,2	0,12	117	5	
<b>Dez. 12</b>	75	1,1	0,05	3,9	0,14	359	21	131	2,4	0,04	7,4	0,27	300	12	
<b>Jan. 13</b>	53	2,6	0,05	7,7	0,28	287	12	128	2,6	0,08	9,4	0,34	362	18	
<b>Feb. 13</b>	34	8,2	0,16	6,2	0,23	75	3	57	2,5	0,05	8,8	0,16	350	9	

# Anhang

Offenbach								Potsdam							
Monat	Nieder- schlag in mm	<sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup> g/g		<sup>129</sup> I in 10 <sup>-16</sup> g/g		<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup>		Nieder- schlag in mm	<sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup> g/g		<sup>129</sup> I in 10 <sup>-16</sup> g/g		<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup>		
		W	U	W	U	W	U		W	U	W	U			
		<b>Mrz. 11</b>	13	2,4	0,09	1,0	0,04		42	2	17	1,9	0,06	1,1	0,05
<b>Apr. 11</b>	22	1,6	0,07	2,0	0,07	119	6	38	2,8	0,17	2,3	0,09	81	6	
<b>Mai 11</b>	29	1,3	0,09	2,9	0,10	221	17	18	2,6	0,15	2,3	0,09	87	6	
<b>Jun. 11</b>	70	1,4	0,09	1,0	0,04	71	5	48	1,9	0,12	2,6	0,10	134	9	
<b>Jul. 11</b>	90	1,2	0,12	5,3	0,19	422	43	193	3,1	0,13	1,6	0,06	51	3	
<b>Aug. 11</b>	93	1,7	0,10	0,8	0,03	47	3	68	1,4	0,12	0,9	0,03	60	6	
<b>Sep. 11</b>	33	1,9	0,12	0,5	0,02	25	2	59	1,6	0,10	1,5	0,06	95	7	
<b>Okt. 11</b>	31	1,9	0,12	2,6	0,09	137	10	39	1,5	0,06	1,7	0,06	112	6	
<b>Nov. 11</b>	1	1,4	0,10	0,5	0,02	35	3	2	2,9	0,20	0,9	0,03	29	2	
<b>Dez. 11</b>	140	0,7	0,05	2,1	0,08	307	26	72	2,6	0,23	2,7	0,10	104	10	
<b>Jan. 12</b>	54	1,0	0,07	4,9	0,18	509	41	57	2,3	0,13	5,5	0,20	235	16	
<b>Feb. 12</b>	4	2,0	0,06	1,6	0,06	80	4	33	2,5	0,07	6,6	0,24	265	12	
<b>Mrz. 12</b>	1	1,4	0,07	1,2	0,04	84	5	9	3,0	0,08	6,0	0,22	197	9	
<b>Apr. 12</b>	42	1,5	0,07	2,2	0,08	148	9	18	1,7	0,07	2,6	0,09	146	8	
<b>Mai 12</b>	57	1,4	0,08	1,3	0,05	91	6	42	1,9	0,10	1,6	0,06	81	5	
<b>Jun. 12</b>	128	1,8	0,10	0,6	0,03	32	2	98	2,6	0,12	1,2	0,05	45	3	
<b>Jul. 12</b>	105	2,7	0,13	1,2	0,05	45	3	148	2,3	0,13	1,1	0,05	48	3	
<b>Aug. 12</b>	38	2,7	0,09	0,6	0,03	23	1	37	2,6	0,13	2,5	0,09	96	6	
<b>Sep. 12</b>	45	2,9	0,10	1,7	0,07	60	3	35	2,4	0,08	2,5	0,09	100	5	
<b>Okt. 12</b>	94	1,2	0,06	1,0	0,04	85	6	32	1,8	0,07	1,9	0,07	104	6	
<b>Nov. 12</b>	53	0,9	0,05	0,4	0,02	49	3	49	1,3	0,06	1,3	0,05	96	5	
<b>Dez. 12</b>	78	1,1	0,05	2,0	0,07	186	11	49	1,7	0,07	3,9	0,06	230	10	
<b>Jan. 13</b>	41	0,8	0,03	0,8	0,03	94	5	75	1,9	0,04	5,8	0,21	294	12	
<b>Feb. 13</b>	39	1,3	0,03	2,0	0,07	157	7	40	1,1	0,03	1,0	0,04	96	4	

Görlitz								Lahr							
Monat	Nieder- schlag in mm	<sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup> g/g		<sup>129</sup> I in 10 <sup>-16</sup> g/g		<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup>		Nieder- schlag in mm	<sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup> g/g		<sup>129</sup> I in 10 <sup>-16</sup> g/g		<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup>		
		W	U	W	U	W	U		W	U	W	U			
		<b>Mrz. 11</b>	28	1,4	0,10	1,4	0,05		99	8	26	1,1	0,05	1,8	0,08
<b>Apr. 11</b>	28	1,5	0,10	1,5	0,06	103	8	22	1,4	0,06	1,2	0,05	86	5	
<b>Mai 11</b>	40	1,3	0,07	1,6	0,06	127	9	40	2,5	0,17	2,6	0,09	101	8	
<b>Jun. 11</b>	42	1,3	0,10	1,9	0,07	144	12	150	1,2	0,09	0,9	0,04	73	6	
<b>Jul. 11</b>	192	1,9	0,10	1,0	0,04	50	3	80	1,7	0,10	1,9	0,07	107	7	
<b>Aug. 11</b>	76	1,0	0,07	0,4	0,02	43	4	99	2,1	0,15	1,2	0,05	57	4	
<b>Sep. 11</b>	62	0,8	0,07	0,6	0,02	66	6	46	0,9	0,08	0,3	0,01	29	3	
<b>Okt. 11</b>	25	1,3	0,07	2,5	0,09	197	13	49	0,8	0,07	1,4	0,05	166	16	
<b>Nov. 11</b>	0	0,4	0,03	0,2	0,01	58	5	1	0,9	0,04	0,2	0,01	25	2	
<b>Dez. 11</b>	60	1,3	0,12	3,4	0,12	259	25	96	0,9	0,04	1,8	0,07	196	11	
<b>Jan. 12</b>	91	1,3	0,05	3,8	0,14	287	16	66	1,2	0,04	3,3	0,12	278	13	

## Anhang

<b>Feb. 12</b>	41	1,8	0,05	6,6	0,24	362	17	11	0,9	0,04	0,8	0,03	93	6	
<b>Mrz. 12</b>	19	2,5	0,06	5,4	0,20	215	9	19	0,7	0,04	1,8	0,06	255	17	
<b>Apr. 12</b>	58	1,0	0,04	1,0	0,04	99	6	65	1,5	0,10	1,7	0,06	114	9	
<b>Mai 12</b>	62	1,3	0,04	1,0	0,04	78	4	73	1,3	0,07	1,3	0,05	95	6	
<b>Jun. 12</b>	105	1,8	0,11	1,0	0,04	55	4	150	1,1	0,03	0,8	0,03	65	4	
<b>Jul. 12</b>	143	1,9	0,11	0,5	0,03	29	2	110	1,7	0,10	1,1	0,05	65	5	
<b>Aug. 12</b>	117	2,0	0,11	0,8	0,04	39	3	54	2,4	0,08	0,6	0,03	27	2	
<b>Sep. 12</b>	37	1,2	0,05	2,1	0,08	174	10	65	3,0	0,08	1,2	0,05	41	2	
<b>Okt. 12</b>	29	1,4	0,06	1,2	0,05	79	4	101	0,6	0,06	0,4	0,02	69	7	
<b>Nov. 12</b>	60	1,2	0,05	0,8	0,03	66	4	109	0,8	0,06	0,7	0,03	87	7	
<b>Dez. 12</b>	40	1,1	0,05	1,5	0,06	136	8	71	0,8	0,05	1,6	0,06	205	16	
<b>Jan. 13</b>	82	0,8	0,03	1,9	0,07	223	11	34	0,8	0,02	1,4	0,05	177	9	
<b>Feb. 13</b>	37	1,2	0,02	2,3	0,09	198	8	66	1,2	0,02	1,7	0,03	144	4	
Nürnberg								München							
Monat	Nieder- schlag in mm	<sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup> g/g		<sup>129</sup> I in 10 <sup>-16</sup> g/g		<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup>		Nieder- schlag in mm	<sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup> g/g		<sup>129</sup> I in 10 <sup>-16</sup> g/g		<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup>		
		W	U	W	U	W	U		W	U	W	U	W	U	
<b>Mrz. 11</b>	10	1,8	0,07	1,2	0,05	66	4	62	1,6	0,07	0,5	0,02	29	2	
<b>Apr. 11</b>	48	1,5	0,10	0,6	0,02	38	3	16	1,1	0,05	0,8	0,03	74	4	
<b>Mai 11</b>	69	1,8	0,11	1,0	0,04	56	4	118	2,0	0,11	0,8	0,03	40	3	
<b>Jun. 11</b>	56	1,6	0,10	0,5	0,02	32	2	110	2,0	0,07	0,4	0,02	19	1	
<b>Jul. 11</b>	142	1,1	0,10	1,2	0,04	106	11	167	2,8	0,15	0,8	0,03	27	2	
<b>Aug. 11</b>	58	2,2	0,14	0,5	0,02	24	2	98	0,7	0,03	0,3	0,01	37	3	
<b>Sep. 11</b>	47	1,7	0,10	0,3	0,01	16	1	100	0,6	0,02	0,3	0,02	48	3	
<b>Okt. 11</b>	41	1,6	0,11	1,4	0,05	89	7	40	1,0	0,04	0,9	0,03	84	4	
<b>Nov. 11</b>	1	0,8	0,07	0,2	0,01	19	2	1	1,0	0,04	0,1	0,01	14	1	
<b>Dez. 11</b>	86	0,8	0,06	1,8	0,07	228	21	101	0,6	0,04	1,6	0,06	278	22	
<b>Jan. 12</b>	73	0,9	0,04	1,9	0,07	211	12	93	1,3	0,08	1,7	0,06	132	10	
<b>Feb. 12</b>	14	14	0,54	2,8	0,10	20	1	21	1,6	0,07	2,7	0,10	163	9	
<b>Mrz. 12</b>	9	4,2	0,28	2,1	0,08	50	4	20	1,1	0,10	2,2	0,08	198	19	
<b>Apr. 12</b>	17	1,4	0,07	1,7	0,06	126	8	65	1,5	0,08	1,3	0,05	85	5	
<b>Mai 12</b>	62	1,4	0,09	2,0	0,07	141	10	86	1,3	0,08	1,5	0,06	115	8	
<b>Jun. 12</b>	46	1,7	0,04	0,8	0,03	45	2	182	0,9	0,03	0,3	0,02	33	2	
<b>Jul. 12</b>	95	1,9	0,04	0,8	0,03	40	2	70	1,5	0,04	0,4	0,02	27	2	
<b>Aug. 12</b>	47	1,3	0,06	0,5	0,02	33	2	212	1,1	0,03	0,3	0,02	23	2	
<b>Sep. 12</b>	55	1,5	0,07	0,7	0,03	47	3	49	1,1	0,04	1,1	0,05	106	6	
<b>Okt. 12</b>	36	0,9	0,03	0,6	0,03	68	4	62	0,6	0,04	0,2	0,02	35	4	
<b>Nov. 12</b>	71	0,8	0,04	0,6	0,03	72	5	64	1,2	0,06	0,2	0,02	14	2	
<b>Dez. 12</b>	86	1,1	0,05	1,8	0,07	160	9	83	0,8	0,05	1,0	0,04	127	9	
<b>Jan. 13</b>	41	7,6	0,15	2,0	0,03	26	1	80	0,9	0,03	0,7	0,03	78	4	
<b>Feb. 13</b>	41	0,7	0,02	1,1	0,02	156	6	86	0,6	0,03	0,7	0,03	110	6	

W = Messwert, U = Messunsicherheit

## Anhang

**Tabelle 12: Entfernung der Niederschlagssammelstellen von der Nordsee**

Ort der Niederschlagssammlung	Entfernung zur Nordseeküste km
Offenbach	400
München	675

Alle anderen Standorte siehe Boden Tabelle 16

### Aerosole

**Tabelle 13: Durchsatz der Aerosolsammler**

Ort der Probenahme	Filtermaterial	Durchsatz in m <sup>3</sup> /h	Filter pro Woche	Maße der Filter
Hannover	Glasfaser	3	7	Ø = 5 cm
Offenbach	Glasfaser	3	1	Ø = 5 cm
Potsdam	Glasfaser	3	7	Ø = 5 cm
Freiburg	Glasfaser	3	2	Ø = 5 cm
Braunschweig (PTB)	Polypropylen	200	1	60 · 60 cm
Braunschweig (Agrar)	Glasfaser	3	1	Ø = 5 cm

**Tabelle 14: Messdaten der Aerosolfilterproben**

Monat	Hannover							Offenbach						
	Durch- satz in m <sup>3</sup>	<sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup> g/m <sup>3</sup>		<sup>129</sup> I in 10 <sup>-17</sup> g/m <sup>3</sup>		<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup>		Durch- satz in m <sup>3</sup>	<sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup> g/m <sup>3</sup>		<sup>129</sup> I in 10 <sup>-17</sup> g/m <sup>3</sup>		<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup>	
		W	U	W	U	W	U		W	U	W	U	W	U
<b>Mrz. 11</b>	-	-	-	-	-	-	-	1875	6,8	0,19	22,0	0,37	31,9	1,1
<b>Apr. 11</b>	1495	1,4	0,07	20,4	0,87	148,3	10,2	1871	2,0	0,22	26,9	1,09	133,1	18,7
<b>Mai 11</b>	1337	0,9	0,06	15,1	0,66	168,0	12,9	1880	1,4	0,12	12,8	0,33	92,5	9,6
<b>Jun. 11</b>	1586	1,1	0,06	42,2	1,76	377,3	26,9	1935	0,6	0,03	14,0	0,69	250,6	17,9
<b>Jul. 11</b>	1520	1,0	0,07	21,2	0,90	204,7	15,8	1846	0,9	0,05	14,0	0,64	153,4	11,1
<b>Aug. 11</b>	2350	1,4	0,06	15,7	0,67	112,3	7,0	1779	1,2	0,05	10,0	0,47	80,3	5,0
<b>Sep. 11</b>	1952	2,5	0,09	23,4	0,99	93,3	5,3	1827	0,9	0,04	9,0	0,44	102,0	6,8
<b>Okt. 11</b>	2408	1,7	0,06	20,0	0,84	118,1	6,6	1782	1,3	0,05	12,0	0,56	90,4	5,5
<b>Nov. 11</b>	1916	4,1	0,16	28,9	1,21	70,2	4,0	1867	5,6	0,35	5,0	0,25	8,9	0,7
<b>Dez. 11</b>	1933	3,2	0,14	45,2	1,88	139,8	8,5	1797	2,4	0,13	27,0	1,30	110,8	7,9
<b>Jan. 12</b>	2425	1,7	0,07	59,6	2,45	335,8	19,0	1797	1,9	0,11	42,0	1,99	220,2	16,3
<b>Feb. 12</b>	1897	2,8	0,12	78,4	3,28	277,3	16,7	1571	1,5	0,08	50,0	2,35	337,6	24,0
<b>Mrz. 12</b>	1930	3,5	0,15	88,9	3,72	251,6	15,1	1571	3,2	0,19	51,0	2,45	156,4	11,8
<b>Apr. 12</b>	2334	2,3	0,10	23,4	0,98	100,6	6,1	1557	1,2	0,07	18,8	0,68	150,0	10,1
<b>Mai 12</b>	1844	2,3	0,08	15,5	0,67	66,1	3,7	1691	0,7	0,05	4,8	0,19	72,5	5,8
<b>Jun. 12</b>	1879	2,2	0,08	16,2	0,70	71,1	3,9	1713	0,7	0,03	2,7	0,13	41,0	2,5
<b>Jul. 12</b>	-	-	-	-	-	-	-	1637	0,5	0,03	3,5	0,15	71,4	5,6
<b>Aug. 12</b>	1930	5,8	0,24	19,6	0,84	33,4	2,0	1785	0,9	0,05	9,3	0,36	104,8	7,0
<b>Sep. 12</b>	1876	1,5	0,06	15,6	0,67	105,0	6,4	1453	1,7	0,09	16,1	0,62	94,0	6,2

## Anhang

<b>Okt. 12</b>	2356	1,3	0,04	15,2	0,64	115,3	6,1	1725	1,2	0,07	8,9	0,34	71,5	4,9	
<b>Nov. 12</b>	1844	2,0	0,08	24,0	1,01	118,9	6,9	1632	1,9	0,12	17,2	0,66	88,3	6,4	
<b>Dez. 12</b>	2288	1,8	0,07	27,6	1,15	149,4	8,3	1570	2,0	0,10	18,9	0,73	92,1	5,7	
<b>Jan. 13</b>	-	-	-	-	-	-	-	1987	2,0	0,06	17,5	0,29	84,9	2,7	
<b>Feb. 13</b>	-	-	-	-	-	-	-	2202	1,6	0,04	17,1	0,28	105,7	3,4	
Potsdam								Schauinsland (Freiburg)							
Monat	Durch- satz in m <sup>3</sup>	<sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup> g/m <sup>3</sup>		<sup>129</sup> I in 10 <sup>-17</sup> g/m <sup>3</sup>		<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup>		Durch- satz in m <sup>3</sup>	<sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup> g/m <sup>3</sup>		<sup>129</sup> I in 10 <sup>-17</sup> g/m <sup>3</sup>		<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup>		
		W	U	W	U	W	U		W	U	W	U	W	U	
<b>Mrz. 11</b>	481	3,7	0,02	27,0	4,00	70,3	3,1	2203	0,5	0,01	7,3	0,13	146,3	4,5	
<b>Apr. 11</b>	2433	8,2	0,83	32,5	3,60	49,3	8,7	1768	1,4	0,06	19,0	0,32	133,4	6,2	
<b>Mai 11</b>	1914	3,8	0,29	10,3	1,03	38,7	5,3	1770	2,1	0,23	14,8	0,55	66,4	8,1	
<b>Jun. 11</b>	2791	6,2	0,25	26,5	1,15	42,0	2,2	2214	2,3	0,11	15,8	1,06	81,2	14,8	
<b>Jul. 11</b>	2124	4,1	0,20	19,1	0,93	45,4	2,8	1768	6,2	0,38	18,0	1,98	45,8	10,6	
<b>Aug. 11</b>	2015	1,6	0,09	11,7	0,51	70,8	4,6	1774	2,9	0,05	10,0	0,43	33,8	1,7	
<b>Sep. 11</b>	2404	4,5	0,19	31,6	1,36	68,7	3,6	2212	3,2	0,06	5,5	0,23	17,2	0,8	
<b>Okt. 11</b>	1847	5,9	0,29	34,1	1,50	57,0	3,4	1738	1,1	0,04	3,6	0,09	31,2	1,4	
<b>Nov. 11</b>	1796	7,7	0,28	21,5	1,05	27,5	1,5	1772	1,5	0,11	1,2	0,09	8,0	0,8	
<b>Dez. 11</b>	2191	5,0	0,22	76,7	3,21	151,4	8,2	2209	1,2	0,10	4,5	0,17	35,2	3,1	
<b>Jan. 12</b>	1756	2,6	0,10	40,8	1,69	153,0	7,7	1767	2,2	0,17	6,1	0,23	26,8	2,3	
<b>Feb. 12</b>	1715	2,6	0,12	45,5	1,88	175,4	9,7	1767	1,5	0,08	8,8	0,32	56,7	3,7	
<b>Mrz. 12</b>	2098	7,4	0,21	45,8	0,77	61,2	2,0	2212	1,5	0,09	7,6	0,28	50,9	3,6	
<b>Apr. 12</b>	1645	2,0	0,09	11,4	0,49	55,4	3,1	1774	1,2	0,03	4,0	0,06	33,4	1,0	
<b>Mai 12</b>	2021	2,4	0,09	8,0	0,35	32,8	1,7	2219	3,5	0,23	6,1	0,26	17,3	1,4	
<b>Jun. 12</b>	1772	2,8	0,12	5,6	0,24	19,8	1,2	1774	4,0	0,23	8,6	0,35	21,1	1,5	
<b>Jul. 12</b>	1729	0,7	0,05	2,4	0,11	35,1	3,1	1776	2,2	0,18	2,2	0,16	10,1	1,1	
<b>Aug. 12</b>	2084	2,4	0,14	8,1	0,39	33,5	2,5	2222	3,5	0,19	4,0	0,18	11,5	0,8	
<b>Sep. 12</b>	1618	2,1	0,11	14,5	0,60	67,5	4,5	1781	3,3	0,17	11,0	0,42	32,4	2,1	
<b>Okt. 12</b>	1597	3,1	0,17	19,4	0,82	62,0	4,4	1772	9,5	0,62	9,0	0,37	9,3	0,7	
<b>Nov. 12</b>	1956	2,8	0,16	35,0	1,43	122,1	8,4	1817	3,4	0,18	22,7	0,85	65,9	4,2	
<b>Dez. 12</b>	1525	2,5	0,13	13,1	0,56	51,0	3,4	1774	2,1	0,14	10,5	0,42	50,1	3,9	
<b>Jan. 13</b>	1506	4,0	0,10	8,5	0,20	20,9	0,7	2215	3,3	0,09	9,9	0,17	29,3	0,9	
<b>Feb. 13</b>	1944	26	1,32	21,2	0,35	8,1	0,4	1860	9,2	0,36	9,9	0,17	10,7	0,5	

W = Messwert, U = Messunsicherheit

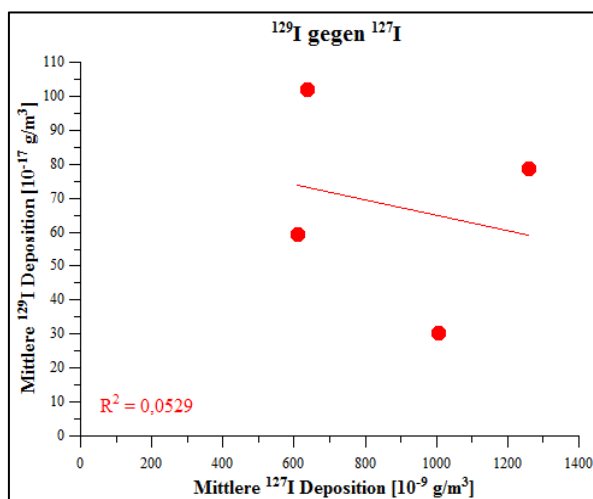


Abbildung 111: Vergleich der mittleren jährlichen Depositionsraten für  $^{129}\text{I}$  in Abhängigkeit vom  $^{127}\text{I}$  in Aerosolen

Tabelle 15: Messdaten der Vergleichsproben aus Braunschweig

Zeitraum	Durchsatz in $\text{m}^3$	Agrarmeteorologie						PTB						
		$^{127}\text{I}$ in $10^{-9} \text{ g/m}^3$		$^{129}\text{I}$ in $10^{-17} \text{ g/m}^3$		$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$		$^{127}\text{I}$ in $10^{-9} \text{ g/m}^3$		$^{129}\text{I}$ in $10^{-17} \text{ g/m}^3$		$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$		
		W	U	W	U	W	U	W	U	W	U	W	U	
2.-9.7.	497	2,77	0,20	2,86	0,26	10	1,2	33892	0,37	0,02	7,4	0,30	196,5	12,3
9.-16.7.	488	9,13	0,55	7,62	0,70	8,2	0,9	33978	0,39	0,03	24,9	1,00	621,8	44,3
16.-23.7.	482	4,28	0,19	21,3	1,47	49	4,0	33696	0,64	0,03	23,6	0,95	360,8	20,8
23.-30.7.	458	1,99	0,13	6,85	0,32	34	2,8	31819	0,63	0,04	22,9	0,92	357,7	23,1
30.7-6.8.	431	1,26	0,07	5,12	0,27	40	3,0	34647	0,68	0,03	15,6	0,63	226,2	11,6
6.-13.8.	437	1,23	0,08	2,99	0,19	24	2,2	32052	0,63	0,03	21,2	0,85	332,3	20,3
13.-20.8.	416	14,1	0,81	1,12	0,16	0,8	0,1	30790	0,93	0,04	12,5	0,50	132,0	7,6
20.-27.8.	400	1,54	0,14	2,39	0,18	15	1,8	37401	0,81	0,05	23,7	0,95	288,2	18,4
27.-3.9.	219	1,22	0,12	5,31	0,27	43	4,6	36376	0,88	0,03	28,1	1,13	314,8	15,6
3.9.-11.9.	444	3,13	0,23	11,7	0,51	37	3,2	33892	0,37	0,02	7,4	0,30	196,5	12,3

W = Messwert, U = Messunsicherheit

### Boden

Tabelle 16: Übersicht über die Nutzung der Bodenprobenahmeorte und ihre Entfernungen von der Nordseeküste

Ort der Probenahme	Nutzung der Fläche	Entfernung zur Nordseeküste in km
Aachen	DWD-Messfeld/Rasen	-
Ankershagen	Mähwiese	270
Bad Arolsen	Mähwiese	275
Bielefeld	Rasen	200
Biendorf	Kuhweide	180
Breungeshain	Mähwiese	400

## Anhang

Essen	DWD-Messfeld/Rasen	210
Fürstenzell	DWD-Messfeld/Rasen	790
Geesthacht	Wiese	120
Görlitz	DWD-Messfeld/Rasen	520
Gohre	Kuhweide	260
Hannover-Langenhagen	DWD-Messfeld/Rasen	170
Kempen	Mähwiese	645
Kerkow	DWD-Messfeld/Rasen	350
Kiel	Kuhweide	80
Lahr	DWD-Messfeld/Rasen	490
Lehnmühle	Mähwiese	510
Ludwigshöhe	Rasen	-
Neu Boltenhagen	Mähwiese	300
Nordenham	Kuhweide	15
Norderney	DWD-Messfeld/Rasen	0,1
Nürnberg	DWD-Messfeld/Rasen	560
Oberweißbach	Grünlandversuchsfeld	500
Potsdam	DWD-Messfeld/Rasen	335
Puch	Grünlandversuchsfeld	670
Schauinsland (Freiburg)	Wiese	530
Schleswig	DWD-Messfeld/Rasen	40
Sophienhof	Almwiese/Weide	310
Stötten	DWD-Messfeld/Rasen	665
Trier	DWD-Messfeld/Rasen	-

**Tabelle 17: Messdaten der Bodenproben**

Ort/Tiefe	$^{127}\text{I}$ in $10^{-6}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-15}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
Potsdam						
40	0,85	0,05	3,95	0,06	4,55	0,27
25	0,91	0,04	8,28	0,11	8,99	0,37
15	1,19	0,04	23,38	0,28	19,26	0,65
7,5	1,32	0,05	43,00	0,51	32,06	1,30
2,5	1,99	0,10	215,12	3,99	106,25	5,58
Langenhagen						
40	1,82	0,07	4,97	0,06	2,69	0,11
25	2,92	0,17	23,91	0,28	8,07	0,49
15	2,80	0,10	62,99	0,72	22,12	0,85
7,5	2,96	0,13	140,06	1,60	46,58	2,18
2,5	3,01	0,24	159,15	1,82	51,99	4,20

## Anhang

---

	$^{127}\text{I}$ in $10^{-6}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-15}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
Görlitz						
40	1,15	0,06	5,76	0,09	4,91	0,28
25	1,00	0,09	21,45	0,29	21,10	1,82
15	1,59	0,09	43,93	0,54	27,15	1,60
7,5	1,77	0,14	57,73	0,70	32,20	2,67
2,5	1,85	0,19	55,15	0,77	29,29	3,05
Nürnberg						
40	7,41	0,31	13,00	0,19	1,73	0,08
25	3,15	0,18	27,22	0,37	8,51	0,49
15	2,77	0,18	43,33	0,53	15,40	1,04
7,5	3,32	0,15	76,67	0,91	22,76	1,06
2,5	2,82	0,16	95,05	1,11	33,18	1,89
Lahr						
40	2,68	0,12	27,73	0,34	10,19	0,47
25	3,08	0,15	110,48	1,29	35,36	1,77
15	2,81	0,14	120,34	1,40	42,11	2,14
7,5	2,79	0,30	115,21	1,36	40,60	4,36
2,5	2,76	0,13	125,40	1,47	44,76	2,11
Schleswig						
40	4,33	0,12	7,97	0,13	1,81	0,06
25	4,40	0,21	23,09	0,32	5,17	0,25
15	3,99	0,28	68,13	0,86	16,81	1,18
7,5	3,61	0,37	222,10	2,64	60,58	6,19
2,5	3,83	0,20	359,80	4,15	92,51	4,88
Bielefeld						
40	2,51	0,12	7,03	0,42	2,76	0,21
25	2,52	0,23	22,06	0,97	8,62	0,88
15	2,56	0,17	37,84	1,50	14,54	1,14
7,5	3,12	0,18	204,88	7,20	64,65	4,34
2,5	2,52	0,13	304,35	10,63	118,93	7,37
Essen						
40	3,66	0,20	29,19	1,13	7,84	0,53
25	4,08	0,29	25,44	1,13	6,14	0,52
15	4,73	0,33	104,36	3,77	21,71	1,71
7,5	4,24	0,22	229,53	8,07	53,24	3,32
2,5	3,93	0,20	320,56	11,18	80,29	5,03
Geesthacht						
40	0,78	0,03	5,26	0,28	6,60	0,44
25	0,71	0,04	14,82	0,63	20,51	1,45
15	0,74	0,07	26,73	1,14	35,34	3,63
7,5	0,99	0,04	81,61	2,98	81,29	4,66
2,5	1,05	0,04	107,23	3,90	100,65	5,63



## Anhang

---

	$^{127}\text{I}$ in $10^{-6}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-15}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
Kiel						
40	4,20	0,10	9,41	0,42	2,20	0,11
25	4,63	0,16	65,26	2,36	13,88	0,69
15	4,91	0,11	63,68	2,32	12,76	0,55
7,5	5,15	0,12	80,69	2,96	15,43	0,67
2,5	4,51	0,26	134,30	4,83	29,30	1,97
Oberweißbach						
40	5,30	0,12	29,20	1,01	5,42	0,22
25	5,08	0,26	51,05	1,77	9,89	0,61
15	3,32	0,19	58,47	2,03	17,33	1,16
7,5	5,05	0,46	214,26	7,69	41,73	4,05
2,5	4,45	0,24	168,87	6,21	37,35	2,45
Sophienhof						
40	5,48	0,15	11,53	0,41	2,07	0,09
25	5,26	0,34	16,96	0,58	3,18	0,23
15	7,77	0,17	102,17	3,52	12,95	0,53
7,5	7,38	0,35	218,51	7,62	29,16	1,73
2,5	8,20	0,19	265,30	9,25	31,86	1,33
Nordenham						
40	7,27	0,24	10,12	0,36	1,37	0,07
25	9,32	0,19	22,90	0,80	2,42	0,10
15	8,86	0,18	52,56	1,82	5,84	0,24
7,5	8,20	0,27	265,34	9,23	31,84	1,53
2,5	12,20	0,74	630,28	22,07	50,85	3,54
Norderney						
40	0,37	0,02	11,19	0,39	29,43	1,95
25	2,15	0,12	26,99	0,94	12,33	0,81
15	5,45	0,15	80,52	2,83	14,56	0,66
7,5	17,70	0,56	501,95	17,45	27,93	1,31
2,5	13,45	0,83	650,17	22,66	47,57	3,38
Breungeshain						
40	3,72	0,13	40,05	1,39	10,59	0,52
25	4,61	0,25	42,71	1,48	9,13	0,58
15	9,50	0,33	119,52	4,18	12,38	0,61
7,5	6,40	0,13	314,45	10,74	48,37	1,92
2,5	8,16	0,21	399,32	13,64	48,20	2,05
Bad Arolsen						
40	0,87	0,04	7,43	0,26	8,41	0,45
25	1,71	0,08	53,93	1,86	31,05	1,75
15	1,68	0,12	52,08	1,84	30,46	2,41
7,5	1,34	0,10	82,98	2,84	61,16	4,92
2,5	1,36	0,03	120,91	4,14	87,36	3,62

## Anhang

---

	$^{127}\text{I}$ in $10^{-6}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-15}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
Ludwigshöhe						
40	2,01	0,05	15,62	0,54	7,65	0,33
25	1,83	0,04	23,97	0,82	12,87	0,51
15	2,27	0,07	36,81	1,26	15,95	0,73
7,5	2,75	0,05	91,84	3,14	32,92	1,30
2,5	1,76	0,04	121,55	4,16	68,02	2,75
Biendorf						
40	1,43	0,07	11,58	0,40	7,98	0,46
25	1,84	0,05	32,61	1,12	17,47	0,78
15	1,93	0,04	29,76	1,02	15,18	0,62
7,5	1,80	0,06	42,05	1,44	22,97	1,08
2,5	1,66	0,05	99,95	3,43	59,40	2,75
Neu Boltenhagen						
40	1,27	0,04	7,42	0,26	5,77	0,29
25	1,73	0,04	21,91	0,75	12,46	0,52
15	1,48	0,04	29,39	1,01	19,57	0,84
7,5	1,31	0,04	50,94	1,75	38,40	1,78
2,5	1,35	0,04	52,68	2,01	38,30	1,85
Kerkow						
40	0,76	0,03	2,12	0,07	2,74	0,14
25	1,09	0,02	6,88	0,24	6,24	0,24
15	2,25	0,04	34,07	1,19	14,92	0,59
7,5	2,83	0,06	88,05	3,08	30,63	1,23
2,5	2,12	0,12	93,46	3,25	43,44	2,84
Ankershagen						
40	2,40	0,10	11,23	0,39	4,61	0,25
25	1,67	0,05	19,00	0,67	11,19	0,53
15	1,54	0,04	35,77	1,25	22,89	1,00
7,5	1,19	0,05	91,02	3,16	75,09	4,18
2,5	1,25	0,06	137,31	4,73	108,15	6,18
Lehnmühle						
40	3,17	0,05	4,59	0,16	1,43	0,05
25	3,76	0,08	16,26	0,58	4,25	0,18
15	3,39	0,06	40,60	1,41	11,78	0,45
7,5	4,31	0,09	85,46	2,97	19,52	0,78
2,5	4,54	0,09	170,28	5,86	36,96	1,47
Gohre						
40	2,85	0,04	11,46	0,40	3,96	0,15
25	6,84	0,12	34,54	1,21	4,97	0,20
15	5,50	0,13	70,31	2,44	12,59	0,53
7,5	7,92	0,12	140,09	4,83	17,42	0,66
2,5	8,34	0,10	161,77	5,58	19,09	0,69

## Anhang

---

	$^{127}\text{I}$ in $10^{-6}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-15}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
Puch						
40	3,21	0,04	16,21	0,56	4,98	0,18
25	2,45	0,08	6,06	0,21	2,43	0,12
15	2,49	0,08	57,80	1,99	22,83	1,10
7,5	2,45	0,08	108,40	3,73	43,62	2,01
2,5	2,81	0,08	122,42	4,21	42,86	1,94
Fürstenzell						
40	2,20	0,05	19,74	0,69	8,83	0,38
25	1,32	0,05	24,99	0,86	18,68	0,94
15	1,40	0,05	49,13	1,69	34,61	1,66
7,5	1,15	0,06	71,01	2,45	60,92	3,70
2,5	1,10	0,05	87,70	3,02	78,49	4,73
Stötten						
40	14,17	0,25	13,73	0,48	0,95	0,04
25	8,86	0,21	23,94	0,82	2,66	0,11
15	6,69	0,21	87,77	3,02	12,91	0,60
7,5	6,10	0,32	194,46	6,68	31,40	1,95
2,5	6,18	0,27	260,08	8,93	41,46	2,31
Kempton						
40	3,44	0,09	13,17	0,45	3,76	0,16
25	4,02	0,08	33,43	1,15	8,18	0,33
15	3,76	0,10	51,04	1,76	13,35	0,57
7,5	3,51	0,10	166,79	5,73	46,76	2,08
2,5	3,62	0,12	187,13	6,43	50,91	2,40
Trier						
40	1,28	0,07	25,78	0,89	19,81	1,26
25	1,33	0,04	69,16	2,37	51,09	2,40
15	1,62	0,05	96,04	3,30	58,39	2,73
7,5	1,58	0,05	153,81	5,29	96,08	4,43
2,5	1,60	0,05	133,06	4,58	81,80	3,78
Schauinsland						
40	8,25	0,16	49,42	1,69	5,90	0,23
25	9,83	0,23	82,50	2,83	8,26	0,34
15	6,83	0,28	254,14	8,72	36,63	1,94
7,5	7,82	0,32	360,47	12,36	45,36	2,42
2,5	8,19	0,18	157,80	5,43	18,98	0,78
Aachen						
40	2,47	0,05	67,10	2,29	26,77	1,05
25	2,12	0,06	74,50	2,55	34,62	1,56
15	2,11	0,06	108,89	3,74	50,75	2,26
7,5	2,72	0,06	136,00	4,68	49,14	2,02
2,5	2,51	0,06	128,94	4,44	50,47	2,08

---

**Tabelle 18: Bodenparameter**

Ort/Tiefe in cm	Fe <sub>Dithionit</sub>	Al <sub>Dithionit</sub>	org. Sub. in %	Körnung in %			pH	Lagerungsdichte in g/cm <sup>3</sup>
	in g/kg	in g/kg		Ton	Schluff	Sand		
<b>Potsdam</b>								
40	2,32	0,77	5,71	3,5	5,2	91,3	5,1	1,51
25	1,71	0,63	2,53	2,0	5,9	92,1	5,3	1,51
15	1,59	0,54	1,50	1,8	5,1	93,2	5,6	1,54
7,5	1,26	0,39	0,84	1,7	3,7	94,6	6,7	1,48
2,5	0,96	0,32	0,48	1,2	2,2	96,6	7,0	1,48
<b>Langenhagen</b>								
40	3,10	0,57	4,83	9,5	29,5	61,0	4,9	1,62
25	3,30	0,59	3,51	10,2	29,8	60,0	5,0	1,62
15	3,24	0,52	2,61	10,5	33,6	56,0	5,5	1,54
7,5	3,55	0,42	1,74	9,5	25,9	64,6	6,3	1,38
2,5	5,31	0,36	1,79	12,9	25,1	62,1	7,2	1,38
<b>Görlitz</b>								
40	4,25	0,50	3,53	12,6	43,1	44,3	5,5	1,48
25	4,72	0,54	2,99	12,6	41,7	45,7	5,9	1,48
15	4,93	0,51	2,86	12,8	37,9	49,4	6,8	1,38
7,5	4,89	0,59	2,20	11,5	37,0	51,6	6,5	1,31
2,5	4,24	0,43	0,64	12,1	28,4	59,5	6,9	1,31
<b>Nürnberg</b>								
40	3,09	0,36	5,57	19,0	10,2	70,8	6,8	1,71
25	2,97	0,30	3,27	17,6	11,2	71,2	6,8	1,71
15	2,86	0,30	2,43	16,7	11,1	72,2	6,9	1,71
7,5	2,92	0,30	2,00	21,0	14,0	64,9	7,0	1,65
2,5	4,40	0,45	1,31	20,7	9,0	70,3	7,1	1,65
<b>Lahr</b>								
40	4,37	0,33	4,37	16,0	53,9	30,2	6,7	1,49
25	4,38	0,34	3,20	15,3	52,6	32,1	6,8	1,49
15	4,84	0,37	2,55	16,1	54,8	29,1	6,8	1,44
7,5	4,69	0,35	1,96	15,7	54,5	29,8	6,9	1,33
2,5	4,92	0,37	1,29	15,2	59,1	25,7	6,9	1,33
<b>Schleswig</b>								
40	4,10	1,10	5,81	11,2	24,4	64,4	4,7	1,31
25	3,98	1,05	3,34	10,8	23,3	65,9	5,0	1,31
15	4,22	1,07	2,34	10,6	25,1	64,3	5,4	1,27
7,5	5,05	1,12	1,96	11,1	29,8	59,1	6,1	1,16
2,5	4,90	1,14	1,22	13,2	28,2	58,6	5,1	1,16
<b>Bielefeld</b>								
40	1,83	0,85	5,21	3,8	4,0	92,2	5,4	1,41
25	2,01	0,98	3,32	3,5	3,8	92,8	5,4	1,41
15	1,66	0,90	2,58	2,0	3,1	94,9	5,7	1,46
7,5	1,50	0,90	2,10	3,3	2,9	93,8	6,2	1,2
2,5	1,12	0,81	1,67	2,7	1,9	95,4	6,1	1,2

## Anhang

---

Essen	Fe <sub>Dithionit</sub>	Al <sub>Dithionit</sub>	org. Sub.	Körnung in %			pH	Lagerungsdichte
40	6,36	0,87	5,14	14,6	62,2	23,2	5,4	1,64
25	6,84	0,85	3,49	14,8	63,6	21,6	5,4	1,64
15	6,83	0,87	2,22	14,1	68,0	17,9	5,4	1,61
7,5	7,27	0,86	1,57	15,3	73,0	11,8	5,7	1,58
2,5	8,13	0,87	1,05	16,7	69,5	13,8	6,2	1,58
Geesthacht								
40	2,35	0,65	3,49	9,3	11,6	79,1	4,0	1,67
25	2,57	0,34	2,39	9,3	11,5	79,2	4,1	1,67
15	2,59	0,41	1,46	8,8	12,1	79,2	4,3	1,66
7,5	4,46	0,48	1,03	8,3	11,6	80,1	4,5	1,5
2,5	2,61	0,33	0,64	8,4	11,9	79,7	4,8	1,5
Kiel								
40	5,12	0,91	5,68	18,6	41,5	40,0	5,4	1,53
25	4,55	0,88	3,03	18,0	40,7	41,4	5,5	1,53
15	5,21	0,92	2,36	18,3	40,9	40,8	5,5	1,59
7,5	5,25	0,95	2,15	19,0	40,1	40,9	5,6	1,55
2,5	6,17	0,95	1,07	23,4	39,9	40,9	5,8	1,55
Oberweißbach								
40	7,76	1,65	13,31	22,9	56,5	20,6	4,2	0,93
25	8,96	1,84	8,34	20,0	54,1	26,0	4,0	0,93
15	7,89	1,65	4,63	21,4	50,4	28,2	4,0	0,93
7,5	8,70	1,93	4,66	19,8	53,3	26,9	4,0	0,93
2,5	9,43	2,13	3,04	18,8	50,5	30,7	4,1	0,93
Sophienhof								
40	8,52	3,66	11,56	27,4	50,1	22,5	5,9	0,89
25	8,12	3,79	10,66	27,3	48,3	24,4	5,1	0,89
15	5,83	3,25	6,91	24,8	44,8	30,4	4,8	0,96
7,5	6,26	3,93	3,77	25,3	45,0	29,7	4,7	0,93
2,5	5,98	3,06	2,10	19,3	44,8	36,0	4,6	0,93
Nordenham								
40	4,50	0,20	19,85	34,6	51,0	14,4	5,3	1,4
25	6,40	0,23	9,75	34,0	53,9	12,1	5,4	1,4
15	6,06	0,21	3,92	35,6	53,4	11,0	5,5	1,36
7,5	6,14	0,26	2,70	40,0	49,7	10,3	5,5	0,82
2,5	4,35	0,25	1,60	36,3	53,1	10,6	5,8	0,82
Norderney								
40	1,62	0,12	3,65	11,9	7,1	80,9	6,7	1,68
25	1,98	0,14	2,77	13,7	7,8	78,6	7,0	1,68
15	1,22	0,11	1,15	5,7	3,2	91,2	7,1	1,61
7,5	0,55	0,10	0,40	2,1	2,1	95,8	7,3	1,51
2,5	0,24	0,03	0,26	0,5	0,7	98,8	6,5	1,51

## Anhang

---

Breungeshain	Fe <sub>Dithionit</sub>	Al <sub>Dithionit</sub>	org. Sub.	Körnung in %			pH	Lagerungsdichte
40	35,84	5,43	10,42	28,7	53,0	18,3	5,7	0,98
25	32,81	5,25	7,45	30,1	54,4	15,5	5,4	0,98
15	34,07	5,46	4,73	24,4	50,0	25,6	5,1	0,98
7,5	31,74	5,34	3,51	20,0	45,7	34,3	4,9	0,98
2,5	32,04	5,41	1,50	13,4	36,4	50,2	4,9	0,98
Bad Arolsen								
40	8,57	0,38	5,99	24,5	31,1	44,4	5,7	1,6
25	8,82	0,36	2,87	24,5	30,9	44,7	5,8	1,6
15	8,81	0,36	1,75	23,5	32,7	43,8	5,9	1,59
7,5	9,03	0,35	1,31	26,4	21,7	51,9	6,0	1,4
2,5	10,51	0,37	0,24	19,9	41,5	38,6	6,0	1,4
Ludwigshöhe								
40	2,45	0,23	6,97	17,1	29,3	53,6	7,1	-
25	2,37	0,22	4,42	15,7	24,2	60,1	7,2	-
15	2,51	0,25	3,22	16,6	26,9	56,5	7,4	-
7,5	2,85	0,28	3,22	14,1	27,8	58,1	7,1	-
2,5	2,60	0,26	2,98	13,2	22,4	64,5	7,3	-
Biendorf								
40	1,54	0,46	5,66	3,8	7,2	89,0	5,6	1,26
25	2,20	0,80	2,80	3,8	5,8	90,4	5,0	1,26
15	1,91	0,71	2,06	3,5	6,4	90,1	4,3	1,25
7,5	2,05	0,73	1,96	3,4	5,1	91,5	4,2	1,61
2,5	1,98	0,46	0,98	3,5	8,1	88,4	4,4	1,61
Neu Boltenhagen								
40	2,81	0,61	2,22	4,8	15,3	79,9	4,5	1,43
25	2,83	0,63	1,91	4,6	12,2	83,2	4,4	1,43
15	2,92	0,67	1,27	4,7	14,0	81,3	4,5	1,54
7,5	2,88	0,65	1,10	4,2	12,2	83,7	4,6	1,52
2,5	2,78	0,64	0,71	3,3	12,4	84,3	4,8	1,52
Kerkow								
40	2,33	0,12	4,35	12,4	18,9	68,7	6,9	1,67
25	2,97	0,16	2,98	11,4	24,7	63,9	7,0	1,67
15	3,15	0,17	1,86	11,9	21,5	66,5	7,1	1,63
7,5	2,97	0,14	0,96	9,6	28,2	62,2	7,3	1,44
2,5	3,05	0,13	0,79	9,0	28,1	62,9	7,4	1,44
Ankershagen								
40	3,43	0,43	7,86	9,8	15,9	74,3	5,2	1,47
25	3,66	0,49	4,80	9,5	17,5	73,0	4,5	1,47
15	3,73	0,49	2,39	8,4	16,9	74,7	4,3	1,47
7,5	3,75	0,47	1,70	7,9	16,9	75,2	4,4	1,34
2,5	3,23	0,40	1,10	6,4	17,2	76,4	4,6	1,34

## Anhang

Lehnmühle	Fe <sub>Dithionit</sub>	Al <sub>Dithionit</sub>	org. Sub.	Körnung in %			pH	Lagerungsdichte
40	8,52	1,74	6,67	16,4	38,9	44,7	4,3	1,37
25	9,46	1,90	3,47	15,3	33,5	51,2	4,2	1,37
15	8,82	1,76	2,72	14,0	37,0	49,0	4,4	1,37
7,5	8,51	1,82	1,39	11,1	34,6	54,3	4,6	1,36
2,5	7,00	1,46	0,65	8,3	29,7	62,0	4,8	1,36
Gohre								
40	2,25	1,16	22,26	25,9	33,6	40,5	25,9	0,88
25	2,20	1,11	20,64	24,1	34,9	41,0	24,1	0,88
15	2,38	1,18	20,09	26,4	34,3	39,3	26,4	0,98
7,5	2,55	1,31	11,80	23,4	40,6	36,0	23,4	0,85
2,5	2,64	2,07	21,17	20,3	39,6	40,1	20,3	0,85
Puch								
40	7,14	1,16	6,79	23,1	66,1	10,8	5,7	1,49
25	7,36	1,21	4,88	22,7	66,5	10,8	5,3	1,49
15	8,02	1,29	2,87	23,6	65,7	10,6	5,3	1,44
7,5	9,95	1,49	0,96	27,4	62,8	9,8	5,4	1,17
2,5	7,69	1,24	1,77	22,1	67,0	10,9	5,4	1,25
Fürstenzell								
40	6,01	0,94	4,63	17,9	35,4	46,7	4,5	1,22
25	5,83	0,87	2,63	17,3	50,6	32,0	4,6	1,22
15	6,11	0,82	2,18	17,6	38,3	44,1	4,6	1,22
7,5	5,15	0,62	1,63	17,4	39,7	42,9	4,8	1,08
2,5	6,47	0,37	1,26	21,7	38,6	39,6	5,1	1,13
Stötten								
40	16,28	2,02	10,87	53,6	41,8	4,6	5,9	1,02
25	17,06	2,15	7,53	52,6	42,2	5,2	6,0	1,02
15	17,08	2,22	4,90	49,0	43,3	7,7	6,3	1,02
7,5	19,88	2,57	3,13	59,6	35,1	5,3	6,5	1,02
2,5	25,30	3,16	2,32	18,4	47,9	33,7	6,9	1,02
Kempten								
40	11,59	1,47	10,87	28,1	39,1	32,7	5,6	0,91
25	12,48	1,58	6,79	28,6	37,4	34,0	5,5	0,91
15	11,42	1,54	4,51	28,4	36,1	35,5	5,5	0,91
7,5	9,55	2,28	2,94	28,0	30,9	41,2	5,5	0,91
2,5	12,00	1,55	2,01	28,1	32,8	39,1	6,0	0,91
Trier								
40	8,85	0,78	4,70	16,4	32,0	51,6	5,1	-
25	8,81	0,79	4,45	18,0	31,4	50,5	5,1	-
15	10,10	0,87	3,22	18,6	34,4	46,9	5,1	-
7,5	11,70	0,95	2,56	16,7	28,8	54,5	5,9	-
2,5	12,33	0,92	1,43	17,8	27,3	54,8	5,7	-

## Anhang

Schauinsland	Fe <sub>Dithionit</sub>	Al <sub>Dithionit</sub>	org. Sub.	Körnung in %			pH	Lagerungsdichte
40	6,78	2,55	8,91	19,7	26,4	53,9	4,8	0,91
25	6,55	2,39	8,07	19,0	28,0	53,1	4,7	0,91
15	6,70	2,46	6,54	18,1	26,4	55,6	4,7	0,91
7,5	9,32	2,25	4,63	14,7	30,6	54,7	4,7	0,91
2,5	8,21	3,43	3,90	12,2	35,2	52,6	4,7	1,04

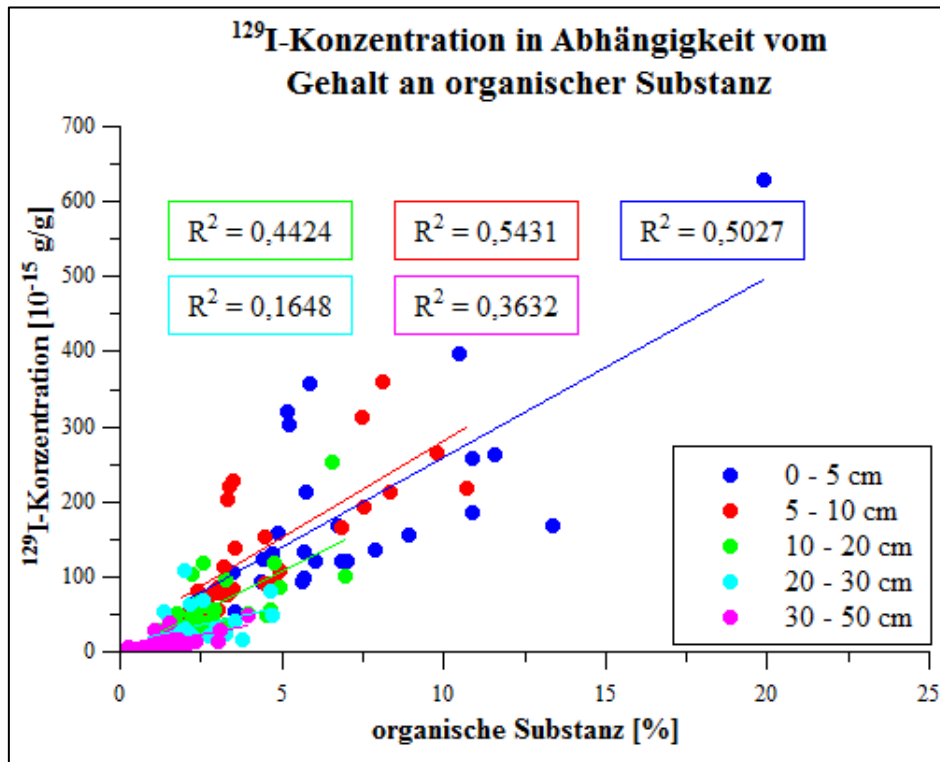


Abbildung 112:  $^{129}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an organischer Substanz und der jeweiligen Schicht

Tabelle 19: Ergebnisse der Messung von IAEA Soil 375

Analysedatum	$^{129}\text{I}$ in Bq/kg	Uns.
15.06.2011	0,0020	0,00002
27.10.2011	0,0014	0,00002
09.10.2012	0,0015	0,00006
05.02.2013	0,0016	0,00005
30.10.2013	0,0015	0,00005
Zertifizierter Wert [98]	0,0017	0,0004



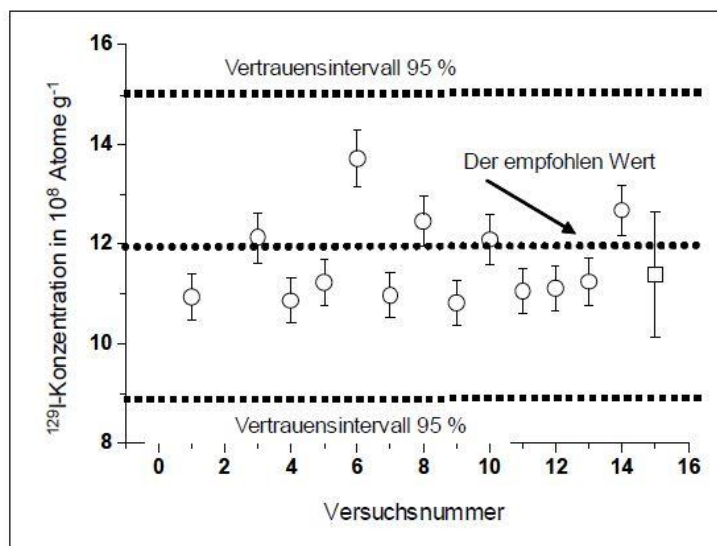


Abbildung 113: Von Daraoui ermittelte Werte des Referenzmaterials IAEA Soil 375 [3]

Oberflächenwässer

Tabelle 20: Messdaten der Flusswasserproben

Oder - Eisenhüttenstadt

Zeitraum	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-17}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
1. Quartal 2011	10,23	0,77	5,28	0,36	5,19	0,48
2. Quartal 2011	7,00	0,67	5,41	0,32	7,39	0,60
3. Quartal 2011	8,09	0,36	8,05	0,32	9,80	0,58
4. Quartal 2011	14,59	0,35	11,67	0,44	7,87	0,35
1. Quartal 2012	9,56	0,21	9,37	0,36	9,65	0,42
2. Quartal 2012	22,75	0,64	7,46	0,31	3,23	0,16
3. Quartal 2012	19,36	0,27	7,21	0,31	3,67	0,16
4. Quartal 2012	17,16	0,32	5,93	0,23	3,40	0,14
1. Quartal 2013	7,47	0,21	7,84	0,13	10,34	0,33

Oder - Schwedt

Zeitraum	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-17}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
1. Quartal 2011	10,27	0,72	6,58	0,41	6,31	0,58
2. Quartal 2011	8,07	0,59	6,15	0,40	7,96	0,49
3. Quartal 2011	8,45	0,70	12,61	0,48	14,70	1,33
4. Quartal 2011	14,26	0,24	8,31	0,32	5,74	0,24
1. Quartal 2012	10,41	0,27	8,02	0,31	7,59	0,35
2. Quartal 2012	15,47	0,38	6,78	0,29	4,32	0,21
3. Quartal 2012	16,56	0,40	8,56	0,35	5,09	0,24
4. Quartal 2012	13,54	0,24	6,36	0,24	4,62	0,19
1. Quartal 2013	7,75	0,14	9,14	0,15	11,61	0,28

## Anhang

---

### Elbe - Geesthacht

Zeitraum	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-17}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
1. Quartal 2011	6,55	0,49	10,30	0,69	15,05	1,50
2. Quartal 2011	5,03	0,50	13,23	0,66	29,10	1,40
3. Quartal 2011	8,41	0,19	12,76	0,48	14,94	0,66
4. Quartal 2011	8,28	0,14	81,06	2,88	96,42	3,76
1. Quartal 2012	6,01	0,07	12,93	0,48	21,20	0,82
2. Quartal 2012	8,07	0,11	7,85	0,33	9,58	0,42
3. Quartal 2012	9,87	0,22	12,89	0,50	12,86	0,57
4. Quartal 2012	7,50	0,11	10,05	0,37	13,18	0,52
1. Quartal 2013	3,28	0,08	6,91	0,12	20,74	0,60

### Elbe - Tangermünde

Zeitraum	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-17}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
1. Quartal 2011	6,58	0,47	5,68	0,36	8,54	0,77
2. Quartal 2011	6,59	0,45	14,08	1,67	16,36	1,52
3. Quartal 2011	6,65	0,27	5,67	0,25	8,40	0,50
4. Quartal 2011	7,19	0,12	6,62	0,26	9,06	0,39
1. Quartal 2012	4,11	0,08	6,37	0,28	15,25	0,74
2. Quartal 2012	6,60	0,09	4,66	0,24	6,94	0,37
3. Quartal 2012	-	-	-	-	-	-
4. Quartal 2012	7,71	0,12	6,47	0,25	8,26	0,34
1. Quartal 2013	5,15	0,07	7,50	0,28	14,32	0,56

### Elbe - Wittenberg

Zeitraum	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-17}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
1. Quartal 2011	5,48	0,28	4,45	0,23	7,98	0,56
2. Quartal 2011	4,65	0,50	4,79	0,62	10,30	2,27
3. Quartal 2011	6,63	0,26	6,49	0,27	9,64	0,55
4. Quartal 2011	7,31	0,16	6,94	0,27	9,34	0,42
1. Quartal 2012	4,00	0,08	6,48	0,26	15,94	0,71
2. Quartal 2012	5,76	0,08	4,96	0,25	8,48	0,44
3. Quartal 2012	5,96	0,11	7,26	0,31	11,99	0,56
4. Quartal 2012	6,00	0,11	7,25	0,27	11,91	0,49
1. Quartal 2013	2,45	0,07	5,20	0,10	20,84	0,70

### Elbe - Dresden

Zeitraum	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-17}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
1. Quartal 2011	6,64	0,42	7,44	0,45	11,41	1,05
2. Quartal 2011	3,74	0,17	2,93	0,18	7,73	0,59
3. Quartal 2011	6,76	0,17	3,40	0,18	4,95	0,29
4. Quartal 2011	7,23	0,18	4,82	0,21	6,56	0,33
1. Quartal 2012	4,20	0,08	3,82	0,18	8,95	0,46

## Anhang

2. Quartal 2012	5,87	0,11	2,73	0,19	4,58	0,33
3. Quartal 2012	5,48	0,06	4,92	0,25	8,84	0,45
4. Quartal 2012	5,38	0,08	20,35	0,74	37,23	1,46
1. Quartal 2013	3,86	0,06	7,78	0,29	19,86	0,79

### Weser - Rinteln

Zeitraum	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-17}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
1. Quartal 2011	3,40	0,23	3,50	0,28	10,19	1,04
2. Quartal 2011	5,53	0,32	5,19	0,34	16,73	0,61
3. Quartal 2011	4,92	0,21	11,61	0,44	23,24	1,33
4. Quartal 2011	4,31	0,14	4,69	0,20	10,71	0,58
1. Quartal 2012	3,10	0,08	5,35	0,22	16,99	0,83
2. Quartal 2012	4,38	0,12	5,26	0,25	11,84	0,64
3. Quartal 2012	4,19	0,09	5,76	0,26	13,55	0,68
4. Quartal 2012	4,16	0,09	6,15	0,23	14,53	0,64
1. Quartal 2013	2,85	0,06	9,07	0,33	31,32	1,30

### Weser - Hörter

Zeitraum	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-17}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
1. Quartal 2011	4,19	0,29	3,29	0,26	7,90	0,91
2. Quartal 2011	2,65	0,21	6,30	0,27	29,54	0,90
3. Quartal 2011	4,23	0,16	11,41	0,43	26,54	1,42
4. Quartal 2011	4,43	0,06	4,75	0,20	10,55	0,47
1. Quartal 2012	4,12	0,14	6,03	0,24	14,39	0,76
2. Quartal 2012	3,70	0,12	3,84	0,21	10,20	0,65
3. Quartal 2012	3,49	0,04	5,51	0,26	15,53	0,74
4. Quartal 2012	4,16	0,08	55,16	2,04	130,44	5,47
1. Quartal 2013	2,59	0,05	5,17	0,20	19,68	0,85

### Ems - Geeste

Zeitraum	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-17}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
1. Quartal 2011	9,16	0,67	13,53	0,74	14,83	1,24
2. Quartal 2011	14,42	0,64	18,61	1,10	12,72	0,97
3. Quartal 2011	14,07	0,38	18,08	0,66	12,65	0,57
4. Quartal 2011	11,21	0,24	16,52	0,60	14,50	0,61
1. Quartal 2012	-	-	-	-	-	-
2. Quartal 2012	10,95	0,23	16,90	0,63	15,20	0,65
3. Quartal 2012	14,64	0,26	18,07	0,67	12,15	0,50
4. Quartal 2012	10,41	0,12	64,01	2,33	60,55	2,30
1. Quartal 2013	4,85	0,10	14,56	0,23	29,53	0,76

### Rhein - Wesel

Zeitraum	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-17}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
1. Quartal 2011	8,13	0,53	5,22	0,35	6,46	0,57

## Anhang

2. Quartal 2011	9,94	0,51	6,77	0,36	7,33	0,38
3. Quartal 2011	9,10	0,25	8,09	0,31	8,75	0,42
4. Quartal 2011	10,08	0,12	30,52	1,10	29,80	1,12
1. Quartal 2012	5,74	0,14	5,75	0,22	9,87	0,45
2. Quartal 2012	8,36	0,14	36,91	1,33	43,44	1,71
3. Quartal 2012	9,73	0,13	14,45	0,55	14,63	0,58
4. Quartal 2012	8,30	0,18	8,04	0,30	9,53	0,41
1. Quartal 2013	6,50	0,10	5,71	0,22	8,65	0,35

### Rhein - Koblenz

Zeitraum	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-17}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
1. Quartal 2011	5,18	0,31	5,73	0,36	11,01	0,95
2. Quartal 2011	3,28	0,23	6,02	0,29	18,36	0,78
3. Quartal 2011	4,77	0,19	6,81	0,27	14,08	0,79
4. Quartal 2011	5,22	0,12	7,25	0,29	13,67	0,63
1. Quartal 2012	4,40	0,09	6,69	0,26	14,97	0,66
2. Quartal 2012	4,24	0,07	5,15	0,24	11,95	0,60
3. Quartal 2012	4,22	0,10	4,38	0,23	10,22	0,58
4. Quartal 2012	3,66	0,06	5,72	0,22	15,39	0,64
1. Quartal 2013	3,68	0,06	4,28	0,17	11,43	0,48

### Rhein - Worms

Zeitraum	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-17}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
1. Quartal 2011	5,34	0,34	5,04	0,35	9,37	0,84
2. Quartal 2011	4,87	0,29	9,27	0,54	19,35	0,91
3. Quartal 2011	4,27	0,20	5,74	0,24	13,24	0,82
4. Quartal 2011	5,56	0,10	10,53	0,39	18,63	0,77
1. Quartal 2012	4,38	0,12	5,92	0,23	13,30	0,63
2. Quartal 2012	4,28	0,09	4,89	0,24	11,24	0,60
3. Quartal 2012	4,57	0,12	5,18	0,26	11,16	0,63
4. Quartal 2012	3,47	0,08	5,18	0,20	14,71	0,65
1. Quartal 2013	3,73	0,07	4,64	0,18	12,23	0,52

### Rhein - Breisach

Zeitraum	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-17}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
1. Quartal 2011	3,74	0,24	3,66	0,29	9,62	0,95
2. Quartal 2011	2,43	0,22	7,68	0,56	29,41	2,16
3. Quartal 2011	2,37	0,19	6,31	0,26	26,20	2,31
4. Quartal 2011	3,04	0,08	4,80	0,21	15,56	0,79
1. Quartal 2012	3,09	0,08	4,46	0,18	14,20	0,69
2. Quartal 2012	2,50	0,05	4,31	0,22	16,96	0,95
3. Quartal 2012	4,49	0,08	4,24	0,23	9,30	0,53
4. Quartal 2012	2,39	0,05	4,04	0,16	16,63	0,73
1. Quartal 2013	2,47	0,04	7,35	0,13	29,37	0,70

## Anhang

Donau - Regensburg						
Zeitraum	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-17}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
1. Quartal 2011	5,27	0,35	1,86	0,23	3,52	0,47
2. Quartal 2011	2,84	0,28	3,05	0,30	10,37	1,24
3. Quartal 2011	4,01	0,15	3,15	0,16	7,72	0,48
4. Quartal 2011	5,19	0,08	2,83	0,15	5,37	0,30
1. Quartal 2012	4,49	0,10	3,09	0,14	6,76	0,33
2. Quartal 2012	3,77	0,08	2,91	0,19	7,60	0,53
3. Quartal 2012	4,47	0,05	2,55	0,20	5,62	0,45
4. Quartal 2012	3,93	0,06	4,74	0,18	11,86	0,50
1. Quartal 2013	2,37	0,04	3,90	0,08	16,25	0,43
Donau - Vilshofen						
Zeitraum	$^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}$ in $10^{-17}$ g/g	Uns.	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	Uns.
1. Quartal 2011	4,45	0,25	2,51	0,24	5,74	0,64
2. Quartal 2011	2,50	0,19	3,08	0,23	12,28	0,82
3. Quartal 2011	3,83	0,16	4,32	0,19	11,11	0,68
4. Quartal 2011	4,11	0,08	3,05	0,16	7,31	0,40
1. Quartal 2012	3,52	0,07	2,55	0,12	7,14	0,37
2. Quartal 2012	4,06	0,06	3,60	0,21	8,73	0,52
3. Quartal 2012	4,07	0,05	2,79	0,20	6,76	0,49
4. Quartal 2012	3,50	0,07	3,39	0,14	9,53	0,44
1. Quartal 2013	7,47	0,21	7,84	0,13	10,34	0,33

**Tabelle 21: Einzugsgebiete in Deutschland und Durchflussgeschwindigkeiten der Flüsse [99–101]**

Fluss/Ort	Einzugsgebiet $\text{km}^2$	Durchflussmenge
Donau/Vilshofen	59.630	625
Elbe/Dresden	-	323
Elbe/Geesthacht	96.930	762
Ems/Geeste	15.600	39
Oder/Eisenhüttenstadt	-	283
Oder/Schwedt	5.590	550
Rhein/Breisach	-	1075
Rhein/Wesel	104.680	2091
Weser/Rinteln	46.300	135
Summe	329.018	-

### ICP-MS

Tabelle 22: Messparameter der ICP-MS Messung

Parameter	Wert
Kühlgas	12,86 l/min
Hilfsgas	0,79 l/min
Zerstäubergas	0,95
Pumpgeschwindigkeit	20 rpm
Drehrichtung	Uhrzeigersinn
Ansaugzeit der Probe	110 s
Spülzeit des Autosamplers	80 s

## 7.5 Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Zeitliche Entwicklung der flüssigen Emissionen der WAAs pro Jahr.....	10
Abbildung 2: Zeitliche Entwicklung der gasförmige Emissionen der WAAs pro Jahr .....	10
Abbildung 3: Eh-pH-Diagramm des Iods in wässriger Lösung bei 25°C. Der schraffierte Bereich kennzeichnet die normalen natürlichen Bedingungen [3] .....	18
Abbildung 4: Zerfallsschema des <sup>129</sup> I.....	18
Abbildung 5: Übersicht über den globalen Iodkreislauf [41] (bearbeitet) .....	19
Abbildung 6: Schematischer Aufbau eines ICP-MS.....	22
Abbildung 7: Induktiv gekoppeltes Plasma [52].....	23
Abbildung 8: Quadrupol [51].....	24
Abbildung 9: Schematische Darstellung des "Tandy" AMS.....	25
Abbildung 10: Probenrad in der Ionenquelle .....	25
Abbildung 11: Pelletron-Bandgenerator [55].....	27
Abbildung 12: Gasionisationsdetektor .....	28
Abbildung 13: Szintillationsdetektor [59].....	29
Abbildung 14: Probenahmestellen der Niederschläge .....	31
Abbildung 15: Sammelstellen der Aerosole (N = North, E = East, C = Central, S = South, roter Punkt = Hannover-Langenhagen).....	32
Abbildung 16: Probenahmeorte der Bodenproben (rot = Entnahmestellen für Boden, blau = Entnahmestellen für Boden und Niederschlag und/oder Aerosol, gelb = homogenisierte Fläche .....	33
Abbildung 17: Probenahmestellen der Gewässerproben .....	34
Abbildung 18: Niederschlagssammler .....	35
Abbildung 19: Iodfalle .....	35

Abbildung 20: Bohrstock .....	36
Abbildung 21: Schematischer Aufbau der Extraktionsapparatur für Bodenproben .....	39
Abbildung 22: Ergebnisse der Bearbeitung von IAEA Soil-375 .....	40
Abbildung 23: Stechzylinder zur Bestimmung der Lagerungsdichte .....	42
Abbildung 24: ICP-MS mit Autosampler .....	43
Abbildung 25: Probenhalter AMS.....	45
Abbildung 26: "Tandy"-AMS der ETH Zürich.....	46
Abbildung 27: <sup>129</sup> I-Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in 10 <sup>-16</sup> g/g (Norden).....	48
Abbildung 28: <sup>129</sup> I-Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in 10 <sup>-16</sup> g/g (Westen).....	48
Abbildung 29: <sup>129</sup> I-Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in 10 <sup>-16</sup> g/g (Süden).....	49
Abbildung 30: <sup>129</sup> I-Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in 10 <sup>-16</sup> g/g (Osten) .....	49
Abbildung 31: <sup>127</sup> I-Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in 10 <sup>-9</sup> g/g (Norden).....	50
Abbildung 32: <sup>127</sup> I-Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in 10 <sup>-9</sup> g/g (Westen).....	51
Abbildung 33: <sup>127</sup> I-Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in 10 <sup>-9</sup> g/g (Süden).....	51
Abbildung 34: <sup>127</sup> I-Gehalte im monatlichen Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in 10 <sup>-9</sup> g/g (Osten).....	52
Abbildung 35: Ergebnisse der monatlichen Isotopenverhältnisse im Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in 10 <sup>-9</sup> (Norden).....	53
Abbildung 36: Ergebnisse der monatlichen Isotopenverhältnisse im Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in 10 <sup>-9</sup> (Westen).....	54
Abbildung 37: Ergebnisse der monatlichen Isotopenverhältnisse im Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in 10 <sup>-9</sup> (Süden).....	54
Abbildung 38: Ergebnisse der monatlichen Isotopenverhältnisse im Niederschlag von März 2011 bis Februar 2013 in 10 <sup>-9</sup> (Osten) .....	55
Abbildung 39: Mittlere jährliche Deposition von <sup>129</sup> I durch Niederschläge in 10 <sup>-12</sup> g/m <sup>2</sup> (blau = hohe Werte, rot = niedrige Werte, ! = auffällige Werte).....	56

Abbildung 40: Mittlere jährliche Deposition von $^{127}\text{I}$ durch Niederschläge in $10^{-6} \text{ g/m}^2$ (blau = hohe Werte, ! = auffällige Werte).....	56
Abbildung 41: $^{129}\text{I}$ -Depositionsrates im Niederschlag in $10^{-12} \text{ g/m}^2$ in Abhängigkeit von der Entfernung zur Nordsee in km .....	57
Abbildung 42: $^{127}\text{I}$ -Depositionsrates im Niederschlag in $10^{-6} \text{ g/m}^2$ in Abhängigkeit von der Entfernung zur Nordsee in km .....	57
Abbildung 43: Vergleich der mittleren jährlichen Depositionsrates für $^{129}\text{I}$ in Abhängigkeit von $^{127}\text{I}$ im Niederschlag .....	58
Abbildung 44: Ergebnisse der monatlichen $^{129}\text{I}$ -Messungen der Aerosolfilter von März 2011 bis Februar 2013 in $10^{-17} \text{ g/m}^3$ .....	59
Abbildung 45: Ergebnisse der monatlichen $^{127}\text{I}$ -Messungen der Aerosolfilter von März 2011 bis Februar 2013 in $10^{-9} \text{ g/m}^3$ .....	60
Abbildung 46: Ergebnisse der monatlichen Isotopenverhältnisse der Aerosolfilter von März 2011 bis Februar 2013 in $10^{-9}$ .....	62
Abbildung 47: Durchschnittliche jährliche $^{129}\text{I}$ -Deposition im Aerosol in $10^{-12} \text{ g/m}^2$ .....	64
Abbildung 48: Durchschnittliche jährliche $^{127}\text{I}$ -Deposition im Aerosol in $10^{-6} \text{ g/m}^2$ .....	64
Abbildung 49: Mittlere $^{129}\text{I}$ -Deposition durch Aerosole in $10^{-12} \text{ g/m}^2$ in Abhängigkeit von der Entfernung zur Nordsee in km .....	64
Abbildung 50: Mittlere $^{127}\text{I}$ -Deposition durch Aerosole in $10^{-9} \text{ g/m}^2$ in Abhängigkeit von der Entfernung zur Nordsee in km .....	64
Abbildung 51: <i>High volume sampler</i> der PTB [77] .....	66
Abbildung 52: Bauwagen zur Unterbringung der Iodfalle der Agrarmeteorologie (DWD)....	66
Abbildung 53: Ergebnisse der Vergleichsmessung in Braunschweig für die Isotopenverhältnisse .....	67
Abbildung 54: $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Norden).....	68
Abbildung 55: $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Westen).....	69
Abbildung 56: $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Süden).....	69
Abbildung 57: $^{129}\text{I}$ Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Osten).....	70
Abbildung 58: $^{127}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Norden).....	71
Abbildung 59: $^{127}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Westen).....	71
Abbildung 60: $^{127}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Süden).....	72
Abbildung 61: $^{127}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe (Osten).....	72
Abbildung 62: Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von der Tiefe für Bodenproben aus dem Norden.....	73



Abbildung 63: Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von der Tiefe für Bodenproben aus dem Westen.....	74
Abbildung 64: Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von der Tiefe für Bodenproben aus dem Süden.....	74
Abbildung 65: Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von der Tiefe für Bodenproben aus dem Osten.....	75
Abbildung 66: $^{129}\text{I}$ -Depositionsdichten im Boden in $10^{-9} \text{ g/m}^2$ , rote Beschriftung = höchster und niedrigste Werte .....	76
Abbildung 67: $^{127}\text{I}$ -Depositionsdichten im Boden in $\text{g/m}^2$ , rote Beschriftung = höchster und niedrigster Wert.....	76
Abbildung 68: $^{129}\text{I}$ -Depositionsdichte im Boden in Abhängigkeit von der Entfernung zur Nordsee.....	78
Abbildung 69: $^{127}\text{I}$ -Depositionsdichte im Boden in Abhängigkeit von der Entfernung zur Nordsee.....	78
Abbildung 70: Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von der Tiefe für Bodenproben aus Aachen im Vergleich mit Essen .....	80
Abbildung 71: Gehalt an organischer Substanz in Abhängigkeit von der Tiefe.....	81
Abbildung 72: $^{129}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an organischer Substanz.....	82
Abbildung 73: $^{127}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an organischer Substanz.....	83
Abbildung 74: Gehalt an dithionitlöslichem $\text{Al}_2\text{O}_3$ in Abhängigkeit von der Tiefe .....	85
Abbildung 75: Gehalt an dithionitlöslichem $\text{Fe}_2\text{O}_3$ in Abhängigkeit von der Tiefe .....	85
Abbildung 76: $^{129}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an dithionitlöslichem $\text{Al}_2\text{O}_3$	86
Abbildung 77: $^{127}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an dithionitlöslichem $\text{Al}_2\text{O}_3$	86
Abbildung 78: $^{129}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an dithionitlöslichem $\text{Fe}_2\text{O}_3$	86
Abbildung 79: $^{127}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an dithionitlöslichem $\text{Fe}_2\text{O}_3$	86
Abbildung 80: $^{129}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Elbe.....	90
Abbildung 81: $^{129}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Ems.....	90
Abbildung 82: $^{129}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Weser.....	90
Abbildung 83: $^{129}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben des Rheins .....	90
Abbildung 84: $^{129}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Oder .....	90
Abbildung 85: $^{129}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Donau .....	90
Abbildung 86: $^{127}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Elbe.....	91
Abbildung 87: $^{127}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Ems.....	91
Abbildung 88: $^{127}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Weser.....	91

Abbildung 89: $^{127}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben des Rheins .....	91
Abbildung 90: $^{127}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Oder .....	92
Abbildung 91: $^{127}\text{I}$ -Ergebnisse der Flusswasserproben der Donau .....	92
Abbildung 92: Ergebnisse der Isotopenverhältnisse der Flusswasserproben der Elbe .....	93
Abbildung 93: Ergebnisse der Isotopenverhältnisse der Flusswasserproben der Ems .....	93
Abbildung 94: Ergebnisse der Isotopenverhältnisse der Flusswasserproben aus der Weser ...	93
Abbildung 95: Ergebnisse der Isotopenverhältnisse der Flusswasserproben des Rheins .....	93
Abbildung 96: Ergebnisse der Isotopenverhältnisse der Flusswasserproben der Oder .....	94
Abbildung 97: Ergebnisse der Isotopenverhältnisse der Flusswasserproben der Donau .....	94
Abbildung 98: Mittlere $^{129}\text{I}$ -Konzentration pro Quartal der Flusswasserproben in $10^{-17}$ g/g...	95
Abbildung 99: Mittlere $^{127}\text{I}$ -Konzentration pro Quartal der Flusswasserproben in $10^{-9}$ g/g....	95
Abbildung 100: Einzugsgebiete der Flüsse [92] .....	97
Abbildung 101: Vergleich der mittleren jährlichen $^{129}\text{I}$ -Deposition durch Niederschlag (blau) und Aerosol (rot) in $10^{-12}$ g/m <sup>2</sup> , Sil = Schauinsland .....	98
Abbildung 102: Vergleich der mittleren monatlichen Isotopenverhältnisse im Niederschlag (blau) und den Aerosolen (rot) in $10^{-9}$ , Sil = Schauinsland.....	99
Abbildung 103: Vergleich der jährlichen Deposition durch Niederschlag (blau) und Aerosol (rot) und dem Austrag durch Fließgewässer (türkis) mit der Depositionsdichte in den oberen 50 cm des Bodens (grün) in $10^{-12}$ g/m <sup>2</sup> , Sil = Schauinsland .....	100
Abbildung 104: Vergleich der mittleren Isotopenverhältnisse in Niederschlag (blau) und Aerosol (rot) mit den Isotopenverhältnissen im Boden (grün) in Potsdam in $10^{-9}$ .....	101
Abbildung 105: Vergleich der Isotopenverhältnisse in allen Kompartimenten mit den $^{129}\text{I}$ - Gehalten, * = Daten von A. Daraoui (unveröffentlicht), Aerosol in g (Iod)/g (Luft) mit $\rho(\text{Luft})$ = 1,184 kg/m <sup>3</sup> .....	103
Abbildung 106: Vergleich der Isotopenverhältnisse in allen Kompartimenten mit den $^{127}\text{I}$ - Gehalten, * = Daten von A. Daraoui (unveröffentlicht), Aerosol in g (Probe)/g (Iod) mit $\rho(\text{Luft}) = 1,184$ kg/m <sup>3</sup> .....	105
Abbildung 107: Ergebnisse der Vergleichsmessung in Braunschweig für $^{129}\text{I}$ .....	115
Abbildung 108: Ergebnisse der Vergleichsmessung in Braunschweig für $^{127}\text{I}$ .....	116
Abbildung 109: $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Aachen in Abhängigkeit von der Tiefe im Vergleich mit Essen .....	118
Abbildung 110: $^{127}\text{I}$ -Gehalte im Boden in Aachen in Abhängigkeit von der Tiefe im Vergleich mit Essen .....	119

Abbildung 111: Vergleich der mittleren jährlichen Depositionsraten für $^{129}\text{I}$ in Abhängigkeit vom $^{127}\text{I}$ in Aerosolen .....	125
Abbildung 112: $^{129}\text{I}$ -Konzentration in Abhängigkeit vom Gehalt an organischer Substanz und der jeweiligen Schicht .....	135
Abbildung 113: Von Daraoui ermittelte Werte des Referenzmaterials IAEA Soil 375 [3]... 136	

## 7.6 Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Übersicht über die in der Literatur genannten Isotopenverhältnisse.....	15
Tabelle 2: Übersicht über die verschiedenen Iodspezies [3, 45].....	17
Tabelle 3: Übersicht der verwendeten Einwaagen der Bodenproben .....	39
Tabelle 4: Empirische Verdünnungsfaktoren der ICP-MS Messung.....	43
Tabelle 5: Ergebnisse der Korrektur des $^{132}\text{Xe}$ -Signals mit $^{138}\text{Ba}$ .....	45
Tabelle 6: Erkennungsgrenzen bei der AMS Messung.....	46
Tabelle 7: Abschätzung der jährlichen $^{129}\text{I}$ -Depositionsraten durch Aerosole in $10^{-12} \text{ g/m}^2$ ...	63
Tabelle 8: Abschätzung der jährlichen $^{127}\text{I}$ -Depositionsrate durch Aerosole in $10^{-6} \text{ g/m}^2$ .....	63
Tabelle 9: Jährliche Austragsraten aus den Einzugsgebieten der großen deutschen Wasserstraßen für $^{129}\text{I}$ und $^{127}\text{I}$ .....	96
Tabelle 10: Vergleich des mittleren monatlichen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses im Niederschlag und im Aerosol mit den $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen im Boden der jeweiligen Probenahmeorte.....	102
Tabelle 11: Messdaten der Niederschlagsproben.....	119
Tabelle 12: Entfernung der Niederschlagssammelstellen von der Nordsee.....	123
Tabelle 13: Durchsatz der Aerosolsammler .....	123
Tabelle 14: Messdaten der Aerosolfilterproben .....	123
Tabelle 15: Messdaten der Vergleichsproben aus Braunschweig .....	125
Tabelle 16: Übersicht über die Nutzung der Bodenprobenahmeorte und ihre Entfernungen von der Nordseeküste .....	125
Tabelle 17: Messdaten der Bodenproben .....	126
Tabelle 18: Bodenparameter .....	131
Tabelle 19: Ergebnisse der Messung von IAEA Soil 375.....	135
Tabelle 20: Messdaten der Flusswasserproben .....	136
Tabelle 21: Einzugsgebiete in Deutschland und Durchflussgeschwindigkeiten der Flüsse [99–101].....	140
Tabelle 22: Messparameter der ICP-MS Messung .....	141

### 7.7 Lebenslauf

#### Persönliche Angaben

Name: Annika Mareike Schwinger  
Akademischer Grad: Dipl.-Chem.  
Anschrift: Helmholtzstr. 19  
30165 Hannover  
Email: mareike.schwinger@gmx.de  
Geburtsdatum: 09.10.1985  
Geburtsort: Bielefeld  
Staatsangehörigkeit: deutsch  
Familienstand: ledig

#### Schulbildung

1992 - 1996 Grundschule, Bielefeld  
1996 - 2005 Gymnasium, Bielefeld

#### Hochschulausbildung

10/2005 - 10/2010 Studium der Chemie an der Leibniz Universität Hannover  
Studienschwerpunkt: Analytische Chemie  
Abschluss: Diplom  
04/2010 - 10/2010 Diplomarbeit am Institut für Anorganische Chemie der Leibniz Universität Hannover im Arbeitskreis Analytische Chemie von Prof. Dr. Carla Vogt  
»Analytische Untersuchungen an Moorleichenfunden aus Niedersachsen«  
12/2010 - 07/2014 Doktorarbeit am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz der Leibniz Universität Hannover im Arbeitskreis von Prof. Dr. Clemens Walther zur deutschlandweiten Untersuchung der  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Inventare und ihres Isotopenverhältnisses in verschiedenen Umweltkompartimenten

### **Berufliche Erfahrung**

12/2010 - 06/2014      Wissenschaftliche Mitarbeiterin am Institut für Radioökologie  
und Strahlenschutz der Leibniz Universität Hannover

### **Besondere Kenntnisse**

*Fremdsprachen*      Englisch - Fließend  
Französisch - Grundkenntnisse

*Softwarekenntnisse*      Excel, Word, Powerpoint, QtiPlot

*Zertifikate*      Fachkunde Strahlenschutz S2.2 und S4.1  
Biochemisches Praktikum  
Toxikologie  
Academic writing  
Grundlagen der Rhetorik für Wissenschaftler/-innen

### Publikationen

1. M. Schwinger, A. Daraoui, B. Riebe (2011): Bestimmung von  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen in Umweltproben mittels IC, ICP-MS und AMS, Posterbeitrag, CIA 2011 6. Conference über Ionenanalyse, TU Berlin
2. M. Schwinger, A. Daraoui, B. Riebe (2012): Iodine - 129 in water samples from Germany, NRC-8 EuCheMS International Conference on Nuclear and Radiochemistry, Como, Italy, Book of extended Abstracts, p. 143
3. M. Schwinger, A. Daraoui, B. Riebe (2012): Inventories, Input, and Transport of Iodine Isotopes in Germany, Posterbeitrag, Living with Radiation – Engaging with Society, IRPA 13, Glasgow, Scotland
4. M. Schwinger (2013): Radioactive iodine in precipitation and river water from Germany, Vortrag, 245<sup>th</sup> National Meeting & Exposition, New Orleans, USA
5. M. Schwinger, A. Daraoui, B. Riebe (2013):  $^{129}\text{I}$  in Bodenprofilen aus Deutschland, Posterbeitrag, 7. Workshop RCA ; Hürden und Fallstricke bei der Charakterisierung von Abfall-Gebinden, Dresden
6. M. Schwinger, A. Daraoui, B. Riebe, C. Walther (2013):  $^{129}\text{I}$  in Niederschlagsproben aus Deutschland, Posterbeitrag, GDCh-Wissenschaftsforum Chemie 2013, Darmstadt
7. M. Schwinger, A. Daraoui, B. Riebe, C. Walther, C. Vockenhuber, H.-A. Synal (2013): Iodine-129 in German soils, Annual report 2012; Ion beam physics, ETH Zürich, Schweiz
8. A. Daraoui, M. Schwinger, M. Gorny and B. Riebe (2012): Iodine-129 and iodine-127 in aerosols from Northern Germany, Posterbeitrag, NRC-8 EuCheMS International Conference on Nuclear and Radiochemistry, Como, Italy, Book of extended Abstracts, p. 156

## 8 Abkürzungsverzeichnis

<b>Abkürzung</b>	<b>Bedeutung</b>
AAK	Anionenaustauschkapazität
AMS	Beschleuniger Massenspektrometrie
BfG	Bundesamt für Gewässerkunde
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
Ca(ClO) <sub>2</sub>	Calciumhypochlorid
Ca(IO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	Lautarit (Calciumiodat)
ΔE	Energieverlust der Ionen
DWD	Deutscher Wetterdienst
E <sub>Rest</sub>	Restenergie
ESA	Elektrostatistischer Analysator
F <sub>L</sub>	Lorenzkraft
HNO <sub>3</sub>	Salpetersäure
IC	Ionenchromatographie
ICP-MS	Induktiv gekoppeltes Plasma - Massenspektrometrie
IMIS	Integriertes Mess- und Informationssystem
IRS	Institut für Radioökologie und Strahlenschutz
KAK	Kationenaustauschkapazität
m/z	Masse zu Ladung
NAA	Neutronenaktivierungsanalyse
NaHSO <sub>3</sub>	Natriumhydrogensulfit
NaNO <sub>3</sub>	Chilesalpeter (Natriumnitrat)
NH <sub>3</sub> OHCl	Hydroxylammoniumchlorid
NH <sub>4</sub> HSO <sub>3</sub>	Ammoniumhydrogensulfit
PE	Polyethylen
PP	Polypropylen
PTB	Physikalisch Technische Bundesanstalt
SEV	Sekundärelektronenvervielfacher
SF <sub>6</sub>	Schwefelhexafluorid
TMAH	Tetramethylammoniumhydroxid
ü. NHN	Über Normalhöhennull
WAA	Wiederaufarbeitungsanlage
WAK	Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe
ZSR	Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie

### 9 Literatur

- [1] Binnewies, M.: Allgemeine und anorganische Chemie, 1. Aufl. Heidelberg, Berlin 2004.
- [2] Moran, J. E.; Fehn, U.; Teng, Ray T. D.: Variations in  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratios in recent marine sediments: evidence for a fossil organic component. In: Chemical Geology 152 (1998) 1–2, S. 193–203.
- [3] Daraoui, A.: Migration von I-129 und Retrospektive Dosimetrie, Dissertation. Hannover 2010.
- [4] Ernst, T.: Anthropogenes Iod-129 als Tracer für Umweltprozesse - Ein Beitrag zum Verhalten von Spurenstoffen bei der Migration in Böden und beim atmosphärischen Transport, Dissertation. Hannover 2003.
- [5] Klipsch, K.: Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Umweltproben zwecks der Ermittlung radioökologischer Parameter des  $^{129}\text{I}$  auf seinem Weg von Quellen durch die Nahrungskette bis zum Menschen, Dissertation. Hannover 2005.
- [6] Schmidt, A.: Vergleich von Methoden zur Bestimmung von stabilem und radioaktivem Iod in Umweltproben, Dissertation. Hannover 1995.
- [7] Szidat, S.: Iod-129: Probenvorbereitung, Qualitätssicherung und Analyse von Umweltmaterialien, Dissertation. Hannover 2000.
- [8] Tosch, L.: Untersuchung von Wasserproben aus der Nordsee auf I-129, Dissertation. Hannover 2010.
- [9] Reithmeier, H.; Lazarev, V.; Rühm, W.; Schwikowski, M.; Gäggeler, H. W.; Nolte, E.: Estimate of European  $^{129}\text{I}$  Releases Supported by  $^{129}\text{I}$  Analysis in an Alpine Ice Core. In: Environ. Sci. Technol. 40 (2006) 19, S. 5891–96.
- [10] Michel, R.; Daraoui, A.; Gorny, M.; Jakob, D.; Sachse, R.; Tosch, L.; Nies, H.; Goroncy, I.; Herrmann, J.; Synal, H.-A.; Stocker, M.; Alfimov, V.: Iodine-129 and iodine-127 in European seawaters and in precipitation from Northern Germany. In: Science of The Total Environment 419 (2012) 0, S. 151–69.
- [11] Hou, X. L.; Dahlgaard, H.; Nielsen, S. P.; Kucera, J.: Level and origin of Iodine-129 in the Baltic Sea. In: Journal of Environmental Radioactivity 61 (2002) 3, S. 331–43.
- [12] Daraoui, A.; Michel, R.; Gorny, M.; Jakob, D.; Sachse, R.; Synal, H.-A.; Alfimov, V.: Iodine-129, Iodine-127 and Caesium-137 in the environment: soils from Germany and Chile. In: Journal of Environmental Radioactivity 112 (2012), S. 8–22.
- [13] Hou, X.; Povinec, P. P.; Zhang, L.; Shi, K.; Biddulph, D.; Chang, C.-C.; Fan, Y.; Golser, R.; Hou, Y.; Jeřkovský, M.; Jull, A. J. Tim; Liu, Q.; Luo, M.; Steier, P.; Zhou,



- W.: Iodine-129 in Seawater Offshore Fukushima: Distribution, Inorganic Speciation, Sources, and Budget. In: *Environmental Science & Technology* (2013), S. 3091–98.
- [14] Groupe Radioécologie Nord-Contentin: Rapport de synthèse 1999.
- [15] J Gray and S R Jones and A D Smith: Discharges to the environment from the Sellafield site, 1951-1992. In: *Journal of Radiological Protection* 15 (1995) 2, S. 99.
- [16] Raisbeck, G. M.; Yiou, F.; Zhou, Z. Q.; Kilius, L. R.:  $^{129}\text{I}$  from nuclear fuel reprocessing facilities at Sellafield (U.K.) and La Hague (France); potential as an oceanographic tracer. In: *Journal of Marine Systems* 6 (1995) 5–6, S. 561–70.
- [17] Roger: BNFL 2003. DISCHARGES AND MONITORING OF THE ENVIRONMENT IN THE UK ANNUAL REPORT 2003 (2003).
- [18] Roger: BNFL '99. Annual Report on Discharges and Monitoring of the Environment in the United Kingdom, 1999 (1999).
- [19] Areva: Cumulative release results report. URL: <http://www.areva.com/EN/operations-2315/cumulative-release-results-report-for-the-areva-la-hague-plant.html>. Abrufdatum 06.03.2014.
- [20] Schlosser, C., BfS: Ableitungen Sellafield, Excel-Datei per Email (2013).
- [21] Gómez-Guzmán, J. M.; Enamorado-Báez, S. M.; Pinto-Gómez, A. R.; Abril-Hernández, J. M.; López-Gutiérrez, J. M.; García-León, M.: Anthropogenic  $^{129}\text{I}$  concentration and  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratio in rainwater from Seville (Spain) in the period 2005–2008 as affected by airborne releases from Sellafield and La Hague facilities. In: *Atmospheric Environment* 56 (2012), S. 26–32.
- [22] Lopez-Gutierrez, J. M.; Garca-Leon, M.; Schnabel, C.; Suter, M.; Synal, H.; Szidat, S.: Wet and dry deposition of  $^{129}\text{I}$  in Seville (Spain) measured by accelerator mass spectrometry. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 55 (2001) 3, S. 269–82.
- [23] Hou, X.; Aldahan, A.; Nielsen, S. P.; Possnert, G.: Time Series of  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  Speciation in Precipitation from Denmark. In: *Environ. Sci. Technol.* 43 (2009) 17, S. 6522–28.
- [24] Fan, Y.; Hou, X.; Zhou, W.: Progress on  $^{129}\text{I}$  analysis and its application in environmental and geological researches. In: *Special Issue: Radioactive Decontamination of Water* 321 (2013) 0, S. 32–46.
- [25] Raiwa, M.: Analyse von Iod-129 in Atlantik-Wässern, Bachelorarbeit. Hannover 2013.
- [26] Reithmeier, H.; Lazarev, V.; Kubo, F.; Rühm, W.; Nolte, E.:  $^{129}\text{I}$  in precipitation using a new TOF system for AMS measurements. In: *Nuclear Instruments and Methods in*

- Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 239 (2005) 3, S. 273–80.
- [27] Persson, S.; Aldahan, A.; Possnert, G.; Alfimov, V.; Hou, X.:  $^{129}\text{I}$  Variability in precipitation over Europe. In: Accelerator Mass Spectrometry Proceedings of the Tenth International Conference on Accelerator Mass Spectrometry 259 (2007) 1, S. 508–12.
- [28] Hou, X.; Hou, Y.: Analysis of  $^{129}\text{I}$  and its Application as Environmental Tracer. In: Journal of Analytical Science & Technology 3 (2012) 2, S. 135–53.
- [29] Englund, E.; Aldahan, A.; Hou, X. L.; Possnert, G.; Söderström, C.: Iodine ( $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$ ) in aerosols from northern Europe. In: Proceedings of the Eleventh International Conference on Accelerator Mass Spectrometry 268 (2010) 7–8, S. 1139–41.
- [30] Santos, F. J.; López-Gutiérrez, J. M.; García-León, M.; Suter, M.; Synal, H.-A.: Determination of  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  in aerosol samples in Seville (Spain). In: Journal of Environmental Radioactivity 84 (2005) 1, S. 103–09.
- [31] Jabbar, T.; Steier, P.; Wallner, G.; Kandler, N.; Katzlberger, C.: AMS analysis of iodine-129 in aerosols from Austria. In: Proceedings of the 10th European Conference on Accelerators in Applied Research and Technology (ECAART10) 269 (2011) 24, S. 3183–87.
- [32] Jabbar, T.; Steier, P.; Wallner, G.; Priller, A.; Kandler, N.; Kaiser, A.: Iodine Isotopes ( $^{127}\text{I}$  and  $^{129}\text{I}$ ) in Aerosols at High Altitude Alp Stations. In: Environmental Science & Technology 46 (2012) 16, S. 8637–44.
- [33] Wershofen, H.; Aumann, D. C.: Iodine-129 in the environment of a nuclear fuel reprocessing plant: VII. Concentrations and chemical forms of  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  in the atmosphere. In: Journal of Environmental Radioactivity 10 (1989) 2, S. 141–56.
- [34] Aumann, D.; Güner, D.: Determination of  $^{129}\text{I}$  in soils of Germany using radiochemical neutron activation analysis. In: Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 242 (1999) 3, S. 641–45.
- [35] Schmitz, K.; Aumann, D. C.: A study on the association of two iodine isotopes, of natural  $^{127}\text{I}$  and of the fission product  $^{129}\text{I}$ , with soil components using a sequential extraction procedure. In: Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 198 (1995) 1, S. 229–236.
- [36] Hansen, V.; Roos, P.; Aldahan, A.; Hou, X.; Possnert, G.: Partition of iodine ( $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$ ) isotopes in soils and marine sediments. In: Journal of Environmental Radioactivity 102 (2011) 12, S. 1096–104.

- [37] Hou, X.; Hansen, V.; Aldahan, A.; Possnert, G.; Lind, O. C.; Lujaniene, G.: A review on speciation of iodine-129 in the environmental and biological samples. In: 750th Anniversary Volume 632 (2009) 2, S. 181–96.
- [38] Luo, M.; Hou, X.; Zhou, W.; He, C.; Chen, N.; Liu, Q.; Zhang, L.: Speciation and migration of  $^{129}\text{I}$  in soil profiles. In: Journal of Environmental Radioactivity 118 (2013) 0, S. 30–39.
- [39] Muramatsu, Y.; Ohmomo, Y.: Iodine-129 and iodine-127 in environmental samples collected from Tokaimura/Ibaraki, Japan. In: Science of The Total Environment 48 (1986) 1–2, S. 33–43.
- [40] Doshi, G. R.; Joshi, S. N.; Pillai, K. C.:  $^{129}\text{I}$  in soil and grass samples around a nuclear reprocessing plant. In: Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 155 (1991) 2, S. 115–127.
- [41] Aldahan, A.; Kekli, A.; Possnert, G.: Distribution and sources of  $^{129}\text{I}$  in rivers of the Baltic region. In: Journal of Environmental Radioactivity 88 (2006) 1, S. 49–73.
- [42] Kekli, A.; Aldahan, A.; Meili, M.; Possnert, G.; Buraglio, N.; Stepanauskas, R.:  $^{129}\text{I}$  in Swedish rivers: distribution and sources. In: Science of The Total Environment 309 (2003) 1–3, S. 161–72.
- [43] Moran, J. E.; Oktay, S. D.; Santschi, P. H.: Sources of iodine and iodine-129 in rivers. In: Water Resources Research 38 (2002) 8, S. 24–1.
- [44] Snyder, G.; Fehn, U.: Global distribution of  $^{129}\text{I}$  in rivers and lakes: implications for iodine cycling in surface reservoirs. In: Proceedings of the Ninth International Conference on Accelerator Mass Spectrometry 223–224 (2004) 0, S. 579–86.
- [45] Holleman, A. F.; Wiberg, E.; Wiberg, N.: Lehrbuch der anorganischen Chemie, 102., stark umgearbeitete und verb. Aufl. Berlin, New York 2007.
- [46] Whitehead, D. C.: The distribution and transformations of iodine in the environment. In: Environment International 10 (1984) 4, S. 321–39.
- [47] Rahn, K. A.; Borys, R. D.; Duce, R. A.: Tropospheric Halogen Gases: Inorganic and Organic Components. In: Science 192 (1976) 4239, S. p 549–550.
- [48] Jabbar, T.; Wallner, G.; Steier, P.: A review on  $^{129}\text{I}$  analysis in air. In: Journal of Environmental Radioactivity 126 (2013) 0, S. 45–54.
- [49] Gilfedder, B. S.; Lai, S. C.; Petri, M.; Biester, H.; Hoffmann, T.: Iodine speciation in rain, snow and aerosols. In: Atmospheric Chemistry & Physics 8 (2008), S. 6069–84.

- [50] Gilfedder, B. S.; Petri, M.; Wessels, M.; Biester, H.: An iodine mass-balance for Lake Constance, Germany: Insights into iodine speciation changes and fluxes. In: *Geochimica et Cosmochimica Acta* 74 (2010) 11, S. 3090–111.
- [51] Cammann, K. (Hrsg.): *Instrumentelle Analytische Chemie. Verfahren, Anwendung und Qualitätssicherung*. Heidelberg, Berlin 2001.
- [52] Schwedt, G.: *Analytische Chemie. Grundlagen, Methoden und Praxis*, 2. Auflage. Weinheim 2008.
- [53] Skoog, D. A.; Leary, J. J.: *Instrumentelle Analytik. Grundlagen Geräte Anwendungen*. Berlin, Heidelberg 1996.
- [54] National Electrostatics Corp.: *Negative Ion Beam Sources. Source of Negative Ions by Cesium Sputtering - SNICS II*. URL: <http://www.pelletron.com/negion.htm>. Abrufdatum 4.11.13.
- [55] Hinterberger, F.: *Physik der Teilchenbeschleuniger und Ionenoptik*, 2. Aufl. Berlin, Heidelberg 2008.
- [56] Vockenhuber, C.; Alfimov, V.; Christl, M.; Lachner, J.; Schulze-König, T.; Suter, M.; Synal, H.-A.: The potential of He stripping in heavy ion AMS. In: *Proceedings of the Twelfth International Conference on Accelerator Mass Spectrometry*, Wellington, New Zealand, 20-25 March 2011 294 (2013) 0, S. 382–86.
- [57] Stocker, M.; Bertschinger, R.; Döbeli, M.; Grajcar, M.; Jacob, S.; Scheer, J.; Suter, M.; Synal, H.-A.: Status of the PSI/ETH compact AMS facility. In: *Proceedings of the Ninth International Conference on Accelerator Mass Spectrometry* 223–224 (2004) 0, S. 104–08.
- [58] Müller, A.: *Entwicklung von universellen AMS Anlagen bei tiefen Energien*, Dissertation. Zürich 2009.
- [59] Vogt, H.-G.; Schultz, H.: *Grundzüge des praktischen Strahlenschutzes*, 6. Auflage. München, Wien 2011.
- [60] Universität Wien: *Grundlagen-Vertiefung zu Szintillationszähler und Energiespektren* Version vom 29. Februar 2012. URL: <http://www.univie.ac.at/anfpra/neu1/ps/ps3/Grundlagen-Vertiefung-PS3-PL11.pdf>.
- [61] Szidat, S.; Schmidt, A.; Handl, J.; Jakob, D.; Botsch, W.; Michel, R.; Synal, H.-A.; Schnabel, C.; Suter, M.; López-Gutiérrez, J. M.; Städe, W.: Iodine-129: Sample preparation, quality control and analyses of pre-nuclear materials and of natural waters

- from Lower Saxony, Germany. In: 8th International Conference on Accelerator Mass Spectrometry 172 (2000) 1–4, S. 699–710.
- [62] Boaretto, E.; Berkovits, D.; Delmas, R.; Johnson, R. R.; Kaufman, A.; Magaritz, M.; Paul, M.; Pourchet, M.: Measurements of anthropogenic radionuclides in environmental samples. In: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 92 (1994) 1–4, S. 350–56.
- [63] Moor, A.: Ein Methodenvergleich zur  $^{129}\text{I}$  Bestimmung in Aerosolfiltern, Bachelorarbeit. Hannover.
- [64] Deutsches Institut für Normung DIN: Bodenbeschaffenheit - Bestimmung des Trockenrückstandes und des Wassergehalts auf Grundlage der Masse - Gravimetrisches Verfahren (ISO 11465: 1993) (1996) 11465.
- [65] Whitehead, D. C.: STUDIES ON IODINE IN BRITISH SOILS. In: Journal of Soil Science 24 (1973) 2, S. 260–70.
- [66] Whitehead, D. C.: The sorption of iodide by soils as influenced by equilibrium conditions and soil properties. In: Journal of the Science of Food and Agriculture 24 (1973) 5, S. 547–56.
- [67] Whitehead, D. C.: IODINE IN SOIL PROFILES IN RELATION TO IRON AND ALUMINIUM OXIDES AND ORGANIC MATTER. In: Journal of Soil Science 29 (1978) 1, S. 88–94.
- [68] Shetaya, W. H.; Young, S. D.; Watts, M. J.; Ander, E. L.; Bailey, E. H.: Iodine dynamics in soils. In: Geochimica et Cosmochimica Acta 77 (2012) 0, S. 457–73.
- [69] Scheffer, F.; Schachtschabel, P.; Blume, H.-P.: Lehrbuch der Bodenkunde. In: Lehrbuch der Bodenkunde (2010).
- [70] Whitehead, D. C.: The sorption of iodide by soil components. In: Journal of the Science of Food and Agriculture 25 (1974) 1, S. 73–79.
- [71] Deutsches Institut für Normung DIN: Chemische Analytik - Nachweis-, Erfassungs- und Bestimmungsgrenzen (1994) 32645.
- [72] Deutsches Institut für Normung DIN: Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen: Allgemeine Anwendungen (2000) 25842-10. Berlin.
- [73] Johanson, K. J.: SKB Technical Report TR-00-21 Iodine in soil 2000.
- [74] Aldahan, A.; Persson, S.; Possnert, G.; Hou, X. L.: Distribution of  $^{127}\text{I}$  and  $^{129}\text{I}$  in precipitation at high European latitudes. In: Geophysical Research Letters 36 (2009) 11, S. L11805.

- [75] Keogh, S. M.; Aldahan, A.; Possnert, G.; Vintró, L. León; Mitchell, P. I.; Smith, K. J.; McGinnity, P.: Anthropogenic  $^{129}\text{I}$  in precipitation and surface waters in Ireland. In: Proceedings of the Eleventh International Conference on Accelerator Mass Spectrometry 268 (2010) 7–8, S. 1232–35.
- [76] Fuge, R.; Johnson, C.: The geochemistry of iodine — a review. In: Environmental Geochemistry and Health 8 (1986) 2, S. 31-54.
- [77] Wershofen, H.; Arnold, D.: Radionuclides in Ground-level Air in Braunschweig – Report of the PTB Trace Survey Station from 1998 to 2003. Braunschweig 2005.
- [78] Markert, B.: Environmental sampling for trace analysis. Weinheim, New York 1994.
- [79] Suzuki, T.; Banba, S.; Kitamura, T.; Kabuto, S.; Isogai, K.; Amano, H.: Determination of  $^{129}\text{I}$  in environmental samples by AMS and NAA using an anion exchange resin disk. In: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 259 (2007) 1, S. 370–73.
- [80] Schmidt, A.; Schnabel, C.; Handl, J.; Jakob, D.; Michel, R.; Synal, H.-A.; Lopez, J. M.; Suter, M.: On the analysis of iodine-129 and iodine-127 in environmental materials by accelerator mass spectrometry and ion chromatography. In: Science of The Total Environment 223 (1998) 2–3, S. 131–56.
- [81] Sheppard, M.; Thibault, D. H.; McMurry, J.; Smith, P. A.: Factors affecting the soil sorption of iodine. In: Water, Air, and Soil Pollution 83 (1995) 1-2, S. 51-67.
- [82] Blum, Winfried E. H: Bodenkunde in Stichworten, 6., völlig neu bearb. Aufl. Berlin [u.a.] 2007.
- [83] Sheppard, M. I.; Thibault, D. H.: Chemical behaviour of iodine in organic and mineral soils. In: Applied Geochemistry 7 (1992) 3, S. 265–72.
- [84] Hou, X.; Fogh, C.; Kucera, J.; Andersson, K.; Dahlgard, H.; Nielsen, S.: Iodine-129 and Caesium-137 in Chernobyl contaminated soil and their chemical fractionation. In: Science of The Total Environment 308 (2003) 1-3, S. 97–109.
- [85] Mengel, K.: Principles of plant nutrition, 5th ed. Dordrecht, Boston 2001.
- [86] Blume, H.-P.; Stahr, K.; Leinweber, P.: Bodenkundliches Praktikum. Eine Einführung in pedologisches Arbeiten für Ökologen, insbesondere Land- und Forstwirte, und für Geowissenschaftler, 3., neubearbeitete Auflage. Heidelberg 2011.
- [87] Post, J. E.: Manganese oxide minerals: Crystal structures and economic and environmental significance. In: Proceedings of the National Academy of Sciences 96 (1999) 7, S. 3447–54.

- [88] McKenzie, R. M.: The surface charge on manganese dioxides. In: Australian Journal of Soil Research 19 (1981) 1, S. 41.
- [89] Government, U. S.: Redox and Sorption Reactions of Iodine and Cesium During Transport Through Aquifer Sediments 2011.
- [90] Gallard, H.; Allard, S.; Nicolau, R.; Gunten, U. von; Croue, J. P.: Formation of iodinated organic compounds by oxidation of iodide-containing waters with manganese dioxide. In: Environmental science & technology 43 (2009) 18, S. 7003–09.
- [91] Sponagel, H.: Bodenkundliche Kartieranleitung. Mit 103 Tabellen, 5., verb. und erw. Aufl. Stuttgart 2005.
- [92] Duden - Die deutsche Rechtschreibung. Das umfassende Standardwerk auf der Grundlage der aktuellen amtlichen Regeln, 26 Aufl. [s.l.] 2013.
- [93] Krupp, G.; Aumann, D. C.: Iodine-129 in rainfall over Germany. In: Journal of Environmental Radioactivity 46 (1999) 3, S. 287–99.
- [94] Tsukada, H.; Ishida, J.; Narita, O.: Particle-size distributions of atmospheric  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  aerosols. In: Atmospheric Environment. Part A. General Topics 25 (1991) 5-6, S. 905–08.
- [95] Daraoui, A.: Daten zu Iodgehalten in Nord- und Ostsee (unveröffentlicht) (2014).
- [96] Michel, R.; Handl, J.; Ernst, T.; Botsch, W.; Szidat, S.; Schmidt, A.; Jakob, D.; Beltz, D.; Romantschuk, L. D.; Synal, H.-A.; Schnabel, C.; López-Gutiérrez, J. M.: Iodine-129 in soils from Northern Ukraine and the retrospective dosimetry of the iodine-131 exposure after the Chernobyl accident. In: Science of The Total Environment 340 (2005) 1–3, S. 35–55.
- [97] Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung - StrlSchV. StrlSchV 2001.
- [98] International Atomic Energy Agency: Reference sheet Reference material IAEA-375. Radionuclides and trace elements in soil 2000.
- [99] Adler, G. H.: Hydrologischer Atlas von Deutschland. Berlin 2000.
- [100] FGE Ems: ENTWURF Bewirtschaftungsplan 2008.
- [101] Wasser- und Schifffahrtsverwaltung des Bundes (WSV), bereitgestellt durch die Bundesanstalt für Gewässerkunde (BfG): Abflussdaten 2011 - 2013, Email (17.6.14).